Tome 22 N° 6 JUIN 1961

LE JOURNAL DE PHYSIQUE
ET
LE RADIUM

ÉTUDE DU POMPAGE OPTIQUE DANS LE FORMALISME DE LA MATRICE DENSITÉ (*)

Par J. P. BARRAT,
Laboratoire d'Optique, Faculté des Sciences, Caen.

et

C. COHEN-TANNOUDJI,
Laboratoire de Physique de l'E. N. S.

Résumé. — On étudie de façon détaillée les processus d'absorption et d'émission de photons de résonance optique par un ensemble d'atomes. Le rayonnement est traité quantiquement ; l'ensemble des atomes, représenté par une matrice densité dans l'état excité et l'état fondamental. On montre que sous l'influence de l'excitation lumineuse, l'état fondamental acquiert une durée de vie finie et une self-énergie. Des équations différentielles sont obtenues qui décrivent l'effet des différentes étapes du cycle de pompage optique sur la matrice densité dans l'état fondamental.

Abstract. — A detailed treatment is given for resonance absorption and emission radiation by an ensemble of atoms. Radiation is treated quantum-mechanically. The density matrix formalism is used to describe atoms in the ground and in the excited states. It is shown that the effect of optical excitation is to give the ground state a finite lifetime and a self energy. Differential equations are derived which describe the effect of the different steps of the optical pumping cycle on the density matrix in the ground state.

Introduction. — Nous nous proposons d'étudier l'évolution d'un ensemble d'atomes, possédant une structure Zeeman dans l'état fondamental, et éclairés par une source qui émet leur raie de résonance optique. Les atomes passent à certains instants dans l'état excité en absorbant un photon, puis retournent à l'état fondamental en en émettant un autre. C'est le phénomène bien connu de la résonance optique. Il en résulte une modification des populations des sous-niveaux de l'état fondamental et de la cohérence qui existe entre eux. Le premier effet, dans le cas particulier d'une excitation en lumière σ_+ ou σ_-, n'est autre que le « pompage optique », pouvant créer un important taux d'orientation dans l'état fondamental, déjà souvent étudié [1]. Le deuxième effet a déjà été mis en évidence, en particulier dans l'étude de l'influence de l'intensité lumineuse créant le pompage optique sur la largeur des courbes de résonance magnétique de l'état fondamental [2], ou dans l'étude des phénomènes transitoires qui se produisent lors de l'établissement d'un champ de radiofréquence [3]. Notre étude généralise les résultats obtenus, en précisant l'évolution dans le temps, sous l'influence du pompage optique et du champ de radiofréquence créant la résonance magnétique, de la matrice densité qui représente l'ensemble des atomes. Les éléments diagonaux de cette matrice représentent les populations des sous-niveaux, les éléments non diagonaux la cohérence [4] qui existe entre eux. Nous obtenons certains résultats nouveaux, tels qu'une possibilité de conservation partielle de la cohérence lors de la résonance optique, la prévision de certains déplacements de la raie de résonance magnétique sous l'influence du pompage optique, et la possibilité de calculer simplement de manière générale les effets observés lors des expériences de « faisceau croisé » [5].

Le plan de cette étude est le suivant : nous préciserons d'abord le formalisme mathématique (I) puis nous étudierons successivement l'excitation lumineuse (II) la retombée de l'état excité (III) et enfin le bilan global qui en résulte pour l'état fondamental (IV) ; l'effet d'un champ de haute fré-

(*) Un second article, faisant suite à celui-ci sera publié dans le prochain numéro du *Journal de Physique.*

quence sera étudié en dernier lieu (V). Moyennant certaines approximations que nous préciserons, nous aboutissons à un système d'équations très voisin du système des équations de relaxation de Kubo-Tomita-Bloch-Ayant [6]. Nous montrerons que cette analogie est plus que mathématique, et que, malgré certaines différences, l'excitation lumineuse peut être considérée comme un processus de relaxation auquel sont associés plusieurs temps de relaxation longitudinaux et transversaux. La méthode utilisée pour traiter le champ de rayonnement et les notations sont très voisines de celles déjà utilisées par l'un de nous [7, 8]. Les notations non expliquées sont les mêmes que dans les publications précédentes.

Les parties (1), (II), (III) du plan précédent sont traitées ci-dessous. Les autres le seront dans un second article.

Les résultats de cette étude ont été publiés séparément aux Comptes Rendus de l'Académie des Sciences [9].

I. **Formalisme mathématique.** — 1. Excitation lumineuse. — L'action de la source lumineuse sur un atome sera décrite par l'action d'un ensemble de N ondes planes, correspondant à N photons de vecteurs d'onde $k_1, k_2 \dots k_N$. Tous les k_i sont supposés parallèles, la direction du vecteur électrique étant la même pour toutes les ondes planes, parallèle au vecteur unitaire e_{λ_0}. Le nombre N est supposé très grand et on peut admettre une répartition des nombres d'ondes avec une densité $u(k)\,dk$ dans l'intervalle $(k, k + dk)$. $u(k)$ n'a de valeur notable que dans une bande de largeur Δ entourant la valeur k_0 correspondant à la transition optique considérée. Δ, largeur de raie de la source excitatrice, est supposé grand devant Γ, largeur naturelle du niveau excité, ω_e et ω_f, écarts Zeeman dans l'état excité et dans l'état fondamental :

$$\Delta \gg \Gamma,\ \omega_e,\ \omega_f. \qquad (I, 1)$$

Dans la réalité physique, l'atome est soumis à une succession de trains d'ondes et le modèle adopté peut en sembler éloigné. Nous n'avons cependant pas pu trouver de modèle plus réaliste, permettant de conduire les calculs jusqu'au bout (*). Nous discutons dans l'appendice 1 la validité du modèle. Nous montrons qu'il n'a de sens qu'en calculant des moyennes sur un grand nombre d'atomes ce qui correspond bien aux expériences envisagées dans cet exposé.

2. États du système. — Les états du système, composé d'un atome et du champ de rayonnement que nous considérerons, sont de 3 types [7].

a) Les états où l'atome est dans le sous-niveau Zeeman de nombre quantique magnétique μ de l'état fondamental, en présence des N photons représentant l'onde incidente :

$$|\mu\,;\ k_1, k_2 \dots k_N, e_{\lambda_0} >.$$

ou plus simplement $|\mu >$.

b) Les états où l'atome a absorbé un photon de vecteur d'ondes k_i dans l'onde incidente et se trouve dans le sous-niveau Zeeman de nombre quantique magnétique m de l'état excité :

$$|m\,;\ k_1, \dots k_{i-1}, k_{i+1}, \dots k_N, e_{\lambda_0} >$$

ou plus simplement $|m\,; -k_i >$.

c) Les états où l'atome a absorbé le photon k_i et est retombé dans le sous-niveau Zeeman μ de l'état fondamental en réémettant un photon de vecteur d'ondes k et de polarisation caractérisée par le vecteur e_λ

$$|\mu\,;\ k_1, \dots k_{i-1}, k_{i+1} \dots k_N, e_{\lambda_0}\,;\ k, e_\lambda >$$

ou plus simplement $|\mu\,; -k_i\,; k, \lambda >$.

Si l'on prend comme zéro d'énergie, l'énergie des N photons de l'onde incidente, les énergies de ces 3 types d'états sont respectivement :

$$\mu\omega_f, \quad k_0 - k_i + m\omega_e, \quad k - k_i + \mu\omega_f$$

(dans tout ce qui suit, on a fait $\hbar = 1$, $c = 1$). Le vecteur d'état du système à l'instant t s'écrit :

$$|\Psi(t) > = \sum_\mu a_\mu(t)|\mu > + \sum_{m,i} a_{m;-k_i}(t)\,|m\,; -k_i > + \sum_{\mu,i,k,\lambda} a_{\mu;-k_i;k,\lambda}(t)|\mu\,; -k_i\,; k, \lambda >. \qquad (I, 2)$$

L'état initial, à l'instant $t = t_0$, est représenté par :

$$|\Psi(t_0) > = \sum_\mu a_\mu(t_0)|\mu > \qquad (I, 3)$$

où seuls les $a_\mu(t_0)$ sont non nuls. Le but du formalisme développé ci-dessous est de calculer les $a_\mu(t)$ et $a_{\mu;-k_i;k,\lambda}(t)$ qui décrivent l'état de l'atome avant et après le phénomène de résonance optique, ou plus précisément les éléments de la matrice densité $\overline{a_\mu(t)\,a^*_{\mu'}(t)}$ et $\sum_{i,k,\lambda} \overline{a_{\mu;-k_i;k,\lambda}(t)\,a^*_{\mu';-k_i;k,\lambda}(t)}$, calculés en faisant la moyenne sur les $\mathcal{N}$ atomes identiques d'une vapeur. Les éléments diagonaux ($\mu = \mu'$) de cette matrice représentent les populations des niveaux μ, les éléments non diagonaux ($\mu \neq \mu'$) la « cohérence » entre les niveaux. Nous supposerons qu'une telle cohérence existe à l'état initial

$$(\overline{a_\mu(t_0)\,a^*_{\mu'}(t_0)} \neq 0)$$

et nous étudierons son évolution au cours du temps sous l'influence du pompage optique.

3. Équations d'évolution. — L'Hamiltonien du système comprend deux termes :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_I. \qquad (1, 4)$$

(*) Une des difficultés rencontrée est par exemple l'apparition d'effets d'interférence entre trains d'onde successifs.

$\mathcal{H}_0$ représente l'énergie de l'atome et du champ de rayonnement. Il est diagonal et ses valeurs propres sont les énergies des états données ci-dessus. $\mathcal{H}_I$ représente le couplage entre le rayonnement et l'atome. Ses seuls éléments de matrice non nuls sont donnés par (cf. [7], éq. (I, 13) et (I, 14))

$$\left\{\begin{array}{l} <\mu|\mathcal{H}_I|m\ ;\ -k_i> = A_{ki}\,e^{-ik_i.R} <\mu|e_{\lambda_0}.D|m> \\ <\mu\ ;\ -k_i\ ;\ k,\ \lambda|\mathcal{H}_I|m\ ;\ -k_i> \\ \qquad = A_k\,e^{-ik.R} <\mu|e_\lambda.D|m> \end{array}\right. \quad (I,\ 5)$$

D est (à un facteur près) le moment dipolaire de l'atome. A_k dépend des fonctions d'onde de l'atome et est proportionnel à $\dfrac{1}{\sqrt{k}}$. R détermine la position de l'atome, qui dépend de sa vitesse v :

$$R = R_0 + vt$$

$|\Psi(t)>$ satisfait à :

$$i\frac{d}{dt}|\Psi(t)> = (\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_I)|\Psi(t)>. \quad (I,\ 6)$$

Passons en représentation d'interaction. On pose :

$$\left\{\begin{array}{l} |\Phi(t)> = e^{i\mathcal{H}_0 t}\,|\Psi(t)> \\ \quad = \sum_\mu b_\mu(t)|\mu> + \sum_{m,i} b_{m\,;\,-k_i}(t)|m\ ;\ -k_i> \\ \quad + \sum_{\mu,i,k,\lambda} b_{\mu\,;\,-k_i\,;\,k.\lambda}(t)|\mu\ ;\ -k_i\ ;\ k,\ \lambda> \\ \mathcal{H}'_I(t) = e^{i\mathcal{H}_0 t}\mathcal{H}_I(t)\,e^{-i\mathcal{H}_0 t}. \end{array}\right. \quad (I,\ 7)$$

Il vient :

$$i\frac{d}{dt}|\Phi(t)> = \mathcal{H}'_I(t)|\Phi(t)>. \quad (I,\ 8)$$

Les coefficients b satisfont à :

$$\left\{\begin{array}{ll} ib_\mu = \sum_{m,i} <\mu|\mathcal{H}'_I(t)|m\ ;\ -k_i>\ b_{m\,;\,-k_i} & (I,\ 9a) \\ ib_{m\,;\,-k_i} = \sum_\mu <m\ ;\ -k_i|\mathcal{H}'_I(t)|\mu>\ b_\mu & \\ \qquad + \sum_{\mu',k,\lambda} <m|\mathcal{H}'_I(t)|\mu'\ ;\ k,\ \lambda>\ b_{\mu'\,;\,-k_i\,;\,k.\lambda} & (I,\ 9b) \\ ib_{\mu\,;\,-k_i\,;\,k.\lambda} = \sum_m <\mu\ ;\ k,\ \lambda|\mathcal{H}'_I(t)|m>\ b_{m\,;\,-k_i} & (I,\ 9c) \end{array}\right.$$

avec

$$\left\{\begin{array}{ll} <\mu|\mathcal{H}'_I(t)|m\ ;\ -k_i> = A_{k_i}e^{-ik_iR.} & \\ \qquad <\mu|e_{\lambda_0}.D|m>\ e^{i(k_i - k_0 + \mu\omega_f - m\omega_e)t} & (I,\ 10a) \\ <\mu'\ ;\ k,\ \lambda|\mathcal{H}'_I(t)|m> = & \\ \qquad <\mu'\ ;\ -k_i\ ;\ k,\ \lambda|\mathcal{H}'_I(t)|m\ ;\ -k_i> = A_k\,e^{-ik.R} & \\ \qquad <\mu'|e_\lambda.D|m>\ e^{i(k - k_0 + \mu'\omega_f - m\omega_e)t} & (I,\ 10b) \end{array}\right.$$

(I, $9a$) décrit l'absorption d'un photon et l'excitation de l'atome ; (I, $9b$) décrit l'évolution de l'état excité ; (I, $9c$) décrit la réémission d'un photon et le retour dans l'état fondamental.

II. **Étude de l'excitation optique.** — A. Évolution de l'état fondamental. — Le principe du calcul consiste à éliminer $b_{\mu'\,;\,-k_i\,;\,k.\lambda}$ entre (I, $9c$) et (I, $9b$), puis $b_{m\,;\,-k_i}$ entre (I, $9b$) et (I, $9a$).

1. *Elimination de* $b_{\mu\,;\,-k_i\,;\,k.\lambda}$. — On intègre (I, $9c$) et on porte dans (I, $9b$). Il vient, avec la condition initiale $b_{\mu'\,;\,-k_i\,;\,k.\lambda}(t_0) = 0$

$$\begin{aligned} ib_{m\,;\,-k_i} &= \sum <m\ ;\ -k_i|\mathcal{H}'_I(t)|\mu>\ b_\mu \\ &\quad - i\sum_{\mu',k,\lambda,m'}\int_{t_0}^{t} <m|\mathcal{H}'_I(t)|\mu' k\lambda> \\ &\quad <\mu' k\lambda|\mathcal{H}'_I(t')|m'>\ b_{m'\,;\,-k_i}(t')\,dt'. \end{aligned} \quad (II,\ 1)$$

Le deuxième terme représente les effets de l'émission spontanée sur l'évolution de l'état excité. Le calcul de ce terme est identique à celui que l'on rencontre dans l'étude de l'émission de rayonnement par un atome isolé. On trouve que (II, 1) est équivalent à [7] :

$$\begin{aligned} ib_{m\,;\,-k_i} &= \sum_\mu <m\ ;\ -k_i|\mathcal{H}'_I(t)|\mu>\ b_\mu \\ &\quad - i\left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E\right)b_{m\,;\,-k_i}(t) \end{aligned} \quad (II,\ 2)$$

Γ et ΔE sont la largeur naturelle et la self énergie du niveau excité. Nous poserons :

$$\tilde{k}_0 = k_0 + \Delta E.$$

2. *Elimination de* $b_{m\,;\,-k_i}$. — On intègre de même (II, 2) et on porte dans (I, $9a$) avec la condition initiale $b_{m\,;\,-k_i}(t_0) = 0$

$$\begin{aligned} b_\mu &= -\sum_{m,i,\mu'}\int_{t_0}^{t} e^{-\left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E\right)(t-t')} <\mu|\mathcal{H}'_I(t)|m\ ;\ -k_i> \\ &\quad <m\ ;\ -k_i|\mathcal{H}'_I(t')|\mu'>\ b_{\mu'}(t')\,dt'. \end{aligned} \quad (II,\ 3)$$

Utilisant (I, $10a$) et remplaçant la sommation sur i par une intégration sur k pondérée par la forme de la raie optique excitatrice $u(k)$ (cf. § I, 1) on obtient

$$\begin{aligned} b_\mu &= -\sum_{m,\mu'} <\mu|e_{\lambda_0}.D|m> <m|e_{\lambda_0}.D|\mu'>\ e^{i(\mu-\mu')\omega_f t} \\ &\quad \int_{-\infty}^{+\infty} u(k)|A_k|^2\,dk \int_{t_0}^{t} e^{i[k - \tilde{k}_0 - m\omega_e + \mu'\omega_f - k.v + i\Gamma/2](t-t')} \\ &\quad b_{\mu'}(t')\,dt' \end{aligned} \quad (II,\ 4)$$

L'exponentielle qui figure sous l'intégrale est une fonction de k très rapidement oscillante, et dès que $t - t' \gg 1/\Delta$ où Δ est la largeur de $u(k)$, l'intégrale sur k du produit de cette fonction par $u(k)|A_k|^2$ qui varie très lentement, est nulle. Les seules valeurs de t' qui contribuent à un résultat non nul sont telles que $t > t' > t - (1/\Delta)$.

Si $b_{\mu'}(t)$ varie peu sur un intervalle de temps de l'ordre de $1/\Delta$ (ce que nous justifierons par la suite, cf. § IV, 3), on peut remplacer $b_{\mu'}(t')$ par

$b_{\mu'}(t)$. L'intégrale sur t' se calcule alors aisément et il reste à calculer l'intégrale sur k :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} u(k)\,|A_k|^2\,\mathrm{d}k \frac{1-\mathrm{e}^{i(k-\tilde{k}_0-m\omega_e+\mu'\omega_f-k.v+i\Gamma/2)(t-t_0)}}{-i(k-\tilde{k}_0-m\omega_e+\mu'\omega_f-k.v+i\Gamma/2)}.$$

Pour $t-t_0 \gg 1/\Gamma$, seul cas intéressant puisque la vitesse de variation de $b_\mu(t)$ est lente devant Γ (cf. § IV, 3) on peut négliger le terme exponentiel et il reste pratiquement

$$\int_{-\infty}^{+\infty} u(k)|A_k|^2\,\mathrm{d}k \frac{i}{k-(\tilde{k}_0+k_0.v)+i\Gamma/2} \quad \text{(II, 5)}$$

et

$$b_\mu(t) = -[(\Gamma'/2)+i\Delta E']\sum_{\mu'} A_{\mu\mu'}\,\mathrm{e}^{i(\mu-\mu')\omega_f t}\,b_{\mu'}(t) \quad \text{(II, 6)}$$

en posant :

$$A_{\mu\mu'} = \sum_m < \mu|e_{\lambda_0}.D|m > < m|e_{\lambda_0}.D|\mu' > \quad \text{(II, 7)}$$

$$\frac{\Gamma'}{2} = \int_{-\infty}^{+\infty} u(k)|A_k|^2 \frac{\Gamma/2}{[k-(\tilde{k}_0+k_0.v)]^2+(\Gamma^2/4)}\,\mathrm{d}k \quad \text{(II, 8, a)}$$

$$\Delta E' = \int_{-\infty}^{+\infty} u(k)|A_k|^2 \frac{k-(\tilde{k}_0+k_0.v)}{[k-(\tilde{k}_0+k_0.v)]^2+(\Gamma^2/4)}\,\mathrm{d}k. \quad \text{(II, 8b)}$$

Dans ces expressions, nous avons négligé $m\omega_e$ et $\mu'\omega_f$, qui sont très petits devant la largeur Δ de $u(k)$ qui détermine la vitesse de variation de $u(k)|A_k|^2$. Nous avons remplacé de même $k_0.v$ par $k_0 v$ (effet Doppler qui n'est pas très petit devant Δ, mais devant $\tilde{k}_0$, n'introduisant donc ainsi qu'une erreur négligeable.)

3. *Interprétation physique de* Γ'. — La partie réelle de (II, 5) est une courbe de Lorentz, de largeur Γ centrée au point $\tilde{k}_0+k_0.v$, dont l'aire est égale à π. Γ étant très petit devant Δ, l'intégrale (II, 8*a*) est peu différente de

$$\Gamma'/2 \sim \int_{-\infty}^{+\infty} u(k)\,|A_k|^2\,\pi\delta[k-(\tilde{k}_0+k_0.v)]$$

$$= \pi u(\tilde{k}_0+k_0.v)\,|A_{\tilde{k}_0}|^2 \quad \text{(II, 9)}$$

Γ' s'interprète comme proportionnel à la probabilité par unité de temps que l'atome quitte l'état fondamental en absorbant un photon. Cette probabilité, calculée au moyen de la théorie des perturbations, est en effet $\Gamma' A_{\mu\mu}$ pour le niveau μ.

$1/\Gamma' A_{\mu\mu}$ s'interprète donc comme une durée de vie T_μ du sous-niveau μ. T_μ dépend de μ par $A_{\mu\mu}$, c'est-à-dire par l'état de polarisation de la lumière, et est inversement proportionnelle à l'intensité lumineuse excitatrice à la fréquence d'absorption déplacée par effet Doppler $\tilde{k}_0+k_0.v$.

Nous poserons $\Gamma' = 1/T_p$ (II, 10), pour nous conformer à des notations déjà utilisées [3].

4. *Interprétation physique de* $\Delta E'$. — La partie imaginaire de (II, 5) est une courbe de dispersion de largeur Γ, centrée au point $\tilde{k}_0+k_0.v$. L'intégrale (II, 8*b*) est nulle si le centre k_1 de la raie excitatrice est confondu avec $\tilde{k}_0+k_0.v$. En prenant pour $u(k)$ une forme simple telle qu'un créneau ou une courbe de Lorentz, on peut préciser l'allure générale de variation de $\Delta E'$ avec $k_1-(\tilde{k}_0+k_0.v)$: $\Delta E'$ commence à croître avec $k_1-(\tilde{k}_0+k_0.v)$. Un maximum est atteint pour $k_1-(\tilde{k}_0+k_0.v)$ de l'ordre de $\Delta/2$ où Δ est la largeur de $u(k)$. L'ordre de grandeur de ce maximum est $\Gamma'_0/2$ où Γ'_0 est la valeur de Γ' lorsque $k_1=\tilde{k}_0+k_0 v$. ; $\Delta E'$ décroît ensuite et varie comme $\frac{\Gamma'_0}{2}\frac{\Delta}{k_1-(\tilde{k}_0+k_0.v)}$ pour $\Delta \ll k_1-(\tilde{k}_0+k_0.v)$.

L'interprétation physique de $\Delta E'$ est la suivante : Considérons un atome dans l'état fondamental en présence d'un photon dont l'énergie k_1 ne coïncide pas avec l'énergie résonnante $\tilde{k}_0+k_0.v$. L'absorption réelle du photon par l'atome ne peut avoir lieu : en effet l'énergie ne serait pas conservée. Mais cette transition peut se faire de façon « virtuelle » à condition de durer un temps inférieur à $\frac{1}{k_1-(\tilde{k}_0+k_0.v)}$ en vertu de la 4[e] relation d'incertitude. L'effet de ces transitions virtuelles sur l'atome est de ramener dans l'état fondamental une partie de l'énergie du niveau excité, donc de déplacer le niveau fondamental. $\Delta E'$ est donc la self-énergie de l'état fondamental en présence du rayonnement excitateur. (Remarquons également que par suite de ces transitions virtuelles, les photons se propagent moins vite au sein de la vapeur atomique ; le déplacement qui apparaît dans nos calculs est donc étroitement lié à la dispersion de cette vapeur atomique.)

Notre formalisme, tenant compte uniquement du niveau de résonance, ne peut décrire l'effet des transitions virtuelles vers tous les niveaux excités. Nous montrerons cependant plus loin (chap. IV) que si nous ne pouvons atteindre la self-énergie absolue de l'état fondamental, nous pouvons apprécier la différence des selfs-énergies des sous-niveaux μ. C'est cette différence qui est intéressante parce qu'elle se manifeste sous forme d'un déplacement de la raie de résonance magnétique. Signalons qu'un déplacement de ce genre vient d'être observé expérimentalement par l'un d'entre nous [10].

5. *Introduction de la matrice densité.* — L'équation (II, 6) permet d'écrire :

$$\begin{cases} \dot{b}_\mu = -\left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E'\right) \sum\limits_{\mu''} A_{\mu\mu''}\, e^{i(\mu-\mu'')\omega_f t}\, b_{\mu''} & \text{(II, 11)} \\ \dot{b}^*_{\mu'} = -\left(\frac{1}{2T_p} - i\Delta E'\right) \sum\limits_{\mu''} A_{\mu''\mu'}\, e^{i(\mu''-\mu')\omega_f t}\, b^*_{\mu''} \end{cases}$$

Posons

$$\rho_{\mu\mu'} = b_\mu\, b^*_{\mu'} \qquad \text{(II, 12)}$$

$\rho_{\mu\mu'}$ est un élément de la matrice densité représentant l'état de l'atome dans l'état fondamental. A partir de (II, 11) on peut calculer la vitesse de variation de la matrice densité $\frac{d^{(1)}}{dt}\rho_{\mu\mu'}$ due au processus d'excitation.

$$\begin{cases} \frac{d^{(1)}}{dt}\rho_{\mu\mu'} = -\left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E'\right) \sum\limits_{\mu''} A_{\mu\mu''}\, e^{i(\mu-\mu'')\omega_f t}\, \rho_{\mu''\mu'} \\ \qquad - \left(\frac{1}{2T_p} - i\Delta E'\right) \sum\limits_{\mu''} A_{\mu''\mu'}\, e^{i(\mu''-\mu')\omega_f t}\, \rho_{\mu\mu''}. \end{cases} \qquad \text{(II, 13)}$$

Les équations (II, 13) sont strictement équivalentes aux équations (II, 11). Effectuons maintenant la moyenne des 2 membres de l'équation (II, 13) par rapport à l'ensemble des $\mathcal{N}$ atomes de la vapeur. Nous voyons apparaître au 2e membre des termes tels que $\overline{\left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E'\right)\rho_{\mu\mu'}}$. L'effet Doppler varie d'un atome à l'autre. Il en est donc de même pour $1/T_p$ et $\Delta E'$. Mais, par suite des chocs, la valeur de $\rho_{\mu\mu'}$ pour un atome déterminé et sa vitesse n'ont pas de corrélation précise de sorte que l'on peut calculer la moyenne indépendamment pour les deux facteurs $(1/2T_p) + i\Delta E'$ et $\rho_{\mu\mu'}$ du produit précédent. Nous redéfinissons donc $1/2T_p$ et $\Delta E'$ comme étant les moyennes des expressions (II, 8*a*) et (II, 8*b*) par rapport à la fonction de distribution de $\mathbf{k}_0.\mathbf{v}$ qui n'est autre que la courbe d'absorption Doppler.

Dans ces conditions l'équation (II, 13) valable pour chaque atome, est valable pour la matrice densité qui représente un ensemble de $\mathcal{N}$ atomes. Elle nous permet de décrire l'évolution des populations des niveaux ($\rho_{\mu\mu}$) et de la cohérence entre eux ($\rho_{\mu\mu'}$) sous l'influence de l'excitation lumineuse.

6. *Etude de cas particuliers.* — a) *Excitation en lumière* σ_+ *ou* σ_- *ou* π.

Dans ce cas, les éléments de matrice

$$< \mu | \mathbf{e}_{\lambda_0}.\mathbf{D} | m >$$

ne diffèrent de 0 que si $m - \mu = +1, -1$ ou 0 respectivement. Dans ce cas $A_{\mu\mu'}$ n'est différent de 0 que pour $\mu = \mu'$. Une telle excitation est dite non cohérente. C'est le cas usuel des expériences de pompage optique. Dans ce cas (II, 13) s'écrit

$$\frac{d^{(1)}}{dt}\rho_{\mu\mu'} = -\left[\frac{1}{2T_p}(A_{\mu\mu} + A_{\mu'\mu'}) + i\Delta E'(A_{\mu\mu} - A_{\mu'\mu'})\right]\rho_{\mu\mu'} \qquad \text{(II, 14)}$$

Cette équation met bien en évidence, la constante de temps $T_{\mu\mu'}$ telle que

$$\frac{1}{T_{\mu\mu'}} = \frac{1}{2T_p}(A_{\mu\mu} + A_{\mu'\mu'}),$$

avec laquelle la cohérence disparaît, la variation de la distance énergétique $\Delta E'(A_{\mu\mu} - A_{\mu'\mu'})$ entre les deux niveaux — et la « durée de vie » T_μ telle que $1/T_\mu = 1/T_{\mu\mu} = A_{\mu\mu}/T_p$ du niveau μ.

b) *Excitation « cohérente ».* — C'est le cas général où $A_{\mu\mu'} \neq 0$ même pour $\mu \neq \mu'$. C'est en particulier le cas des expériences de « faisceau croisé » [5]. Notre formalisme permet aisément de calculer l'absorption d'un faisceau lumineux. En effet, le nombre de photons absorbés par unités de temps est égal au nombre d'atomes qui quittent l'état fondamental par unité de temps. L'absorption est donc donnée par $-\sum\limits_\mu (d^{(1)}\rho_{\mu\mu}/dt)$.

B. Évolution de l'état excité. — L'intégration de (II, 2) donne :

$$i b_{m;-\mathbf{k}_i} = \sum_\mu \int_{t_0}^{t} e^{-(\Gamma/2 + i\Delta E)(t-t')} < m; -\mathbf{k}_i | \mathcal{H}'_I(t') | \mu > b_\mu(t')\, dt'. \qquad \text{(II. 15)}$$

Prenant le complexe conjugué, l'indice m étant remplacé par m', et multipliant membre à membre l'équation ainsi obtenue par (II, 2) on trouve

$$\dot{b}_{m;-\mathbf{k}_i}\, b^*_{m';-\mathbf{k}_i} = -\left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E\right) b_{m;-\mathbf{k}_i}\, b^*_{m';-\mathbf{k}_i} + \sum_{\mu\mu'} e^{i[(m-m')\omega_e - (\mu-\mu')\omega_f]t} < m | \mathbf{e}_{\lambda_0}.\mathbf{D} | \mu > < \mu' | \mathbf{e}_{\lambda_0}.\mathbf{D} | m' > |A_{\mathbf{k}_i}|^2 \int_{t_0}^{t} e^{-i(k_i - \bar{k}_0 + \mu'\omega_f - m'\omega_e - \mathbf{k}_i.\mathbf{v} - i\Gamma/2)(t-t')}\, b_\mu(t)\, b^*_{\mu'}(t')\, dt'. \qquad \text{(II, 16)}$$

Nous nous intéressons à la cohérence dans l'état excité et aux populations des sous-niveaux m, mais non au photon $\mathbf{k}_i$ absorbé. Nous étudions donc la quantité

$$\rho_{mm'} = \sum_i b_{m;-\mathbf{k}_i}\, b^*_{m';-\mathbf{k}_i} = \int b_{m;-\mathbf{k}}\, b^*_{m';-\mathbf{k}}\, u(k)\, dk$$

dont la dérivée $\frac{d}{dt}\rho_{mm'}$ est donnée par (II, 16) et son complexe conjugué. On rencontre alors les

mêmes intégrales qu'au § II A 2 et on trouve (cf. réf. 8)

$$\sum_i \dot{b}_{m;-k_i} b^*_{m';-k_i} = -\left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E\right) \sum_i b_{m;-k_i} b^*_{m';-k_i} + \left(\frac{\Gamma'}{2} - i\Delta E'\right) e^{i[(m-m')\omega_e - (\mu-\mu')\omega_f]t} < m|e_{\lambda_0}.D|\mu > \sum_{\mu\mu'} \rho_{\mu\mu'} < \mu'|e_{\lambda_0}.D|m' > \quad \text{(II, 17)}$$

et

$$\frac{d\rho_{mm'}}{dt} = -\Gamma\rho_{mm'} + \frac{1}{T_p}\sum_{\mu\mu'} e^{i[(m-m')\omega_e - (\mu-\mu')\omega_f]t} < m|e_{\lambda_0}.D|\mu > \rho_{\mu\mu'} < \mu'|e_{\lambda_0}.D|m' >. \quad \text{(II, 18)}$$

Le 1[er] terme du 2[e] membre de (II, 18) représente l'émission spontanée, le 2[e] terme l'effet du pompage à partir de l'état fondamental.

III. Étude de la réémission de rayonnement. — 1. Matrice densité après réémission de rayonnement exprimée en fonction de l'état excité.

— L'intégration de l'équation (I, 9c) donne :

$$ib_{\mu;-k_i;k,\lambda}(t) = \sum_m \int_{t_0}^{t} < \mu; k, \lambda|\mathcal{H}'_I(t')|m > b_{m;-k_i}(t')\, dt'. \quad \text{(III, 1)}$$

Comme au § II-B, nous prenons l'équation complexe conjuguée, avec l'indice μ' remplaçant μ, et multiplions membre à membre cette équation et (I, 9, c) :

$$b_{\mu;-k_i;k,\lambda} \dot{b}^*_{\mu';-k_i;k,\lambda} = \sum_{mm'} e^{i[(m'-m)\omega_e - (\mu'-\mu)\omega_f]t} |A_k|^2 < \mu|e_\lambda D|m > < m'|e_\lambda.D|\mu' > \int_{t_0}^{t} e^{i[\tilde{k}_0 - k + k.v - \mu\omega_f + m\omega_e](t-t')} b_{m';-k_i}(t)\, b_{m;-k_i}(t')\, dt'. \quad \text{(III, 2)}$$

Nous nous intéressons là encore à la cohérence globale qui existe dans l'état fondamental de l'atome après réémission, ainsi qu'aux populations des niveaux $|\mu>$, et non aux photons absorbés ou réémis. Nous devons donc sommer les 2 membres de (III, 2) par rapport à k_i, k, λ. La sommation sur i revient en fait à supprimer l'indice $-k_i$ dans les deux membres. La sommation sur (k, λ) comporte une sommation sur $|k|$ puis sur la direction de k et la polarisation λ. La sommation sur $|k|$ conduit à évaluer

$$\sum_{|k|} |A_k|^2 \int_{t_0}^{t} e^{i[\tilde{k}_0 - k + k.v - \mu\omega_f + m\omega_e](t-t')} \sum_i b^*_{m';-k_i}(t)\, b_{m;-k_i}(t')\, dt' = \frac{3}{8\pi}\left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E\right) \rho_{mm'}(t) \quad \text{(III : 3)}$$

le calcul étant déjà fait dans la théorie de l'émission spontanée [7] ; on a donc :

$$\sum_{i|k|} b_{\mu;-k_i;k,\lambda} \dot{b}^*_{\mu';-k_i;k,\lambda} = \frac{3}{8\pi}\left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E\right) \sum_{\mu m'} e^{i[(m'-m)\omega_e - (\mu'-\mu)\omega_f]t} < \mu|e_\lambda.D|m > < m'|e_\lambda.D|\mu' > \rho_{mm'}. \quad \text{(III, 4)}$$

Cette équation permet de calculer la quantité de lumière de fluorescence émise par unité de temps dans une direction déterminée avec un état de polarisation donné, qui n'est autre que

$$\frac{d}{dt}\sum_{\mu,i|k|} [b_{\mu;-k_i;k,\lambda} b^*_{\mu';-k_i;k;\lambda}] \quad \text{(cf. réf. 8)}$$

Pour achever la sommation sur k, il convient d'expliciter la nature des éléments de matrice $< \mu|e_\lambda.D|m >$. Nous nous limiterons au cas d'un état fondamental du moment angulaire électronique $J = 0$ avec spin nucléaire I, avec comme état excité le sous-niveau hyperfin F d'un niveau de moment angulaire électronique $J = 1$ (cas des isotopes impairs du mercure, pour la raie 2 537 Å, $6\,^1S_0 - 6\,^3P_1$). Avec les notations de la référence 7, on a :

$$< \mu|e_\lambda D|m > = C_{1I}(F, m ; m - \mu, \mu) < \mu = 0|e_\lambda.D|m_J = m - \mu >_{I=0} \quad \text{(III, 5)}$$

$C_{1I}(F, m ; m - \mu, \mu)$ est un coefficient de Clebsch-Gordan. Le principe du calcul est évidemment le même pour le cas des atomes alcalins pour lesquels la transposition des résultats est aisée.

La sommation sur les angles donne alors [7] :

$$\frac{8\pi}{3}\delta_{m-\mu,\, m'-\mu'}$$

et il reste :

$$\sum_{i,k} b_{\mu;-k_i;k,\lambda} \dot{b}^*_{\mu';-k_i;k,\lambda} = \left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E\right) \sum_{\substack{m,m' \\ m-m'=\mu-\mu'}} e^{i(\mu'-\mu)(\omega_e-\omega_f)t} C_{1I}(F, m ; m - \mu, \mu)\, C_{1I}(F, m' ; m' - \mu', \mu')\, \rho_{mm'}$$

et finalement, la vitesse de variation de la matrice densité de l'état fondamental $d^{(2)}\rho_{\mu\mu'}/dt$ due au processus de retombée est donnée par :

$$d^{(2)}\rho_{\mu\mu'}/dt = \sum_{i,k} \frac{d}{dt}(b_{\mu;-k_i;k,\lambda} b^*_{\mu';-k_i;k;\lambda}) = \Gamma \sum_{\substack{mm' \\ m-m'=\mu-\mu'}} e^{i(\mu'-\mu)(\omega_e-\omega_f)t} C_{1I}(F, m ; m - \mu, \mu)\, C_{1I}(F, m' ; m' - \mu', \mu')\, \rho_{mm'}.$$

On voit qu'on ne peut avoir $d^{(2)}\rho_{\mu\mu'}/dt \neq 0$ pour $\mu \neq \mu'$ que si $\rho_{mm'} \neq 0$ au moins pour certains

couples (m, m') tels que $m \neq m'$. En d'autres termes, il ne peut y avoir de cohérence dans l'état fondamental après réémission de rayonnement que s'il y en a dans l'état excité avant l'émission.

2. Matrice densité après réémission de rayonnement exprimée en fonction de l'état fondamental. — Nous allons chercher à exprimer la vitesse de variation de $\rho_{\mu\mu'}$ due à la réémission d'un photon en fonction des valeurs de $\rho_{\mu\mu'}$ avant l'absorption en éliminant $\rho_{mm'}$ entre (II, 18) et (III, 7). L'intégration de (II, 18) donne

$$\rho_{mm'} = \frac{e^{-\Gamma t}}{T_p} \sum_{\mu\mu'} \int_{t_0}^{t} e^{i[(m-m')\omega_e - (\mu-\mu')\omega_f - i\Gamma]t'}$$

$$< m|e_{\lambda_0}.D|\mu > \rho_{\mu\mu'}(t') < \mu'|e_{\lambda_0} D|m' > dt'. \quad \text{(III, 8)}$$

Si l'on reporte (III, 8) dans (III, 7) on obtient

$$\frac{d^{(2)} \rho_{\mu\mu'}}{dt} = \frac{\Gamma}{T_p} \sum_{\mu''\mu'''} e^{i[(\mu-\mu')-(\mu''-\mu''')]\omega_f t}$$

$$\sum_{\substack{m, m' \\ m-m'=\mu}} < m|e_{\lambda_0}.D|\mu'' > < \mu'''|e_{\lambda_0}.D|m' >$$

$$C_{1I}(F, m\,;\, m-\mu, \mu) \quad C_{1I}(F, m'\,;\, m'-\mu', \mu')$$

$$\int_{t_0}^{t} e^{i[(\mu'-\mu)\omega_e + (\mu''-\mu''')\omega_f + i\Gamma](t-t')} \rho_{\mu''\mu'''}(t')\, dt'. \quad \text{(III, 9)}$$

L'interprétation physique de ce résultat est la suivante : la retombée dans l'état fondamental à l'instant t dépend de toute l' « histoire » de l'état fondamental entre t_0 et t. Mais le facteur $e^{-\Gamma(t-t')}$ fait que les valeurs de $\rho_{\mu''\mu'''}(t')$ pour des instants t', très antérieurs à $t - (1/\Gamma)$ contribuent très peu. En effet, les atomes qui réémettent et retombent dans l'état fondamental à l'instant t l'ont quitté à un instant t', et $t - t'$ ne dépasse guère $1/\Gamma$, durée de vie de l'état excité.

Si nous admettons que la vitesse de variation de $\rho_{\mu''\mu'''}$ est lente devant $1/\Gamma$ (ce que nous justifions plus loin, cf. § IV, 6) on peut donc remplacer dans (III, 9) $\rho_{\mu''\mu'''}(t')$ par $\rho_{\mu''\mu'''}(t)$ et l'intégrale sur t', pour des instants t tels que $t - t_0 \gg 1/\Gamma$, seul cas intéressant en pratique, se réduit à

$$\frac{\rho_{\mu''\mu'''}(t)}{\Gamma + i[(\mu-\mu')\,\omega_e - (\mu''-\mu''')\,\omega_f]}.$$

Donc, la variation de la matrice densité due à la retombée de l'état excité est donnée par :

$$\frac{d^{(2)} \rho_{\mu\mu'}}{dt} = \frac{\Gamma}{T_p} \sum_{\mu''\mu'''} \frac{\rho_{\mu''\mu'''}\, e^{i[(\mu-\mu')-(\mu''-\mu''')]\omega_f t}\, B^{\mu\mu'}_{\mu''\mu'''}}{\Gamma + i[(\mu-\mu')\,\omega_e - (\mu''-\mu'''')\,\omega_f]} \quad \text{(III, 10)}$$

avec

$$B^{\mu\mu'}_{\mu''\mu'''} = \sum_{\substack{mm' \\ m-m'=\mu-\mu'}} < m|e_{\lambda_0}.D|\mu'' > < \mu'''|e_{\lambda_0}.D|m' >$$

$$C_{1I}(F, m\,;\, m-\mu, \mu) \quad C_{1I}(F, m'\,;\, m'-\mu', \mu'). \quad \text{(III, 11)}$$

APPENDICE I

Justification du modèle décrivant l'excitation lumineuse. — Un état tel que

$$|k_1 \ldots k_i \ldots k_N > \quad (1)$$

est un état stationnaire du champ de rayonnement lorsqu'il n'interagit pas avec les atomes. Chaque photon de vecteur d'onde k_i, est associé à une onde plane indéfinie $e^{ik_i r}$, ce qui signifie physiquement que la probabilité pour que le photon se manifeste dans une interaction en un point quelconque de l'espace est la même dans tout l'espace et est constante dans le temps.

Un état tel que

$$|\Psi > = \sum_{k_1 \ldots k_N} \alpha(k_1 \ldots k_N)|k_1 \ldots k_i \ldots k_N > \quad (2)$$

peut, par un choix convenable des α, représenter un paquet d'ondes qui se propage. Il représente donc de manière beaucoup plus réaliste la situation physique : une source émet des trains d'ondes qui passent l'un après l'autre au point où se trouve un atome. La matrice densité représentant $|\Psi >$ par rapport aux états de base du type (1) du champ de rayonnement n'est pas diagonale. $|\Psi >$ n'est en général pas un état propre de l'Hamiltonien du champ de rayonnement en l'absence d'interaction. Il est beaucoup plus difficile de mener les calculs en prenant comme état initial un état du type (2) qu'un état du type (1).

Une difficulté analogue se présente en théorie de la relaxation spin-réseau dans les solides pour la représentation des ondes de phonons dues à l'agitation thermique (réseau). On est amené à représenter le réseau par un mélange statistique d'états, en équilibre thermique, donc par une matrice densité diagonale, et on suppose que l'énergie du réseau est tellement grande devant celle des spins que les échanges d'énergie entre les spins et le réseau ne modifient pas la matrice densité de celui-ci. La première hypothèse se justifie par le fait que nous ne disposons d'aucune donnée précise sur le réseau, et que les effets liés à la présence d'éléments de matrice non diagonaux par rapport au réseau ont une moyenne nulle quand on étudie l'action du réseau sur un très grand nombre de spins, c'est-à-dire si on répète un très grand nombre de fois une même expérience.

Guidés par cette analogie, nous représenterons l'excitation lumineuse par une matrice densité diagonale. Comme nous étudions toujours en pratique l'action du rayonnement sur un très grand nombre d'atomes, cela revient à faire en même temps un très grand nombre d'expériences, et l'on peut alors négliger les effets des termes non diagonaux, dont la moyenne est nulle parce que leur phase varie aléatoirement d'une expérience à une autre. Or, nos équations sont linéaires, par rapport à la ma-

trice densité, et l'on peut admettre que tous les états présents dans le mélange statistique initial correspondent aux mêmes valeurs des paramètres T_p, $\Delta E'$, etc... (c'est-à-dire au même flux lumineux excitateur). Il est alors suffisant de faire le calcul, comme nous l'avons fait, pour un seul état du type (1). On admet en outre que l'absorption du rayonnement par les atomes ne modifie pratiquement pas ses caractéristiques, c'est-à-dire que la matrice densité représentant l'état de l'ensemble du système en ce qui concerne le rayonnement (la trace étant prise sur les états de l'atome) reste toujours la même.

Manuscrit reçu le 16 janvier 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Kastler (A.), *J. Opt. Soc. Amer.*, 1957, **47**, 460. Brossel (J.), Quantum Electronics (édité par Ch. H. Townes, Columbia University Press), p. 82.
[2] Cagnac (B.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 863.
[3] Cagnac (B.) et Barrat (J. P.), *C. R. Acad. Sc.*, 1959, **249**, 534.
[4] Cohen-Tannoudji (C.), Suppl. *Nuovo Cimento*, 1960 (à paraître).
[5] Dehmelt (H. G.), *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 1924. Bell (W. E.) et Bloom (A. L.), *Phys. Rev.*, 1957, **107**, 1559.
[6] Abragam (A.), Principes of nuclear magnetism, Oxford Press, chap. 8.
[7] Barrat (J. P.), *Thèse*, Paris, 1959 ; *J. Physique Rad.*, 1959, **20**, 541, 633, 657.
[8] Barrat (J. P.), *Proc. Roy. Soc.*, Density matrix formalism applied to light beat experiments (à paraître).
[9] Barrat (J. P.) et Cohen-Tannoudji (C.), *C. R. Acad. Sc.*, 1961, **252**, 93, 255.
[10] Cohen-Tannoudji (C.), *C. R. Acad. Sc.*, 1961, **252**, 394.

ÉTUDE DE L'ANTIFERROMAGNÉTISME HELICOIDAL DE $MnAu_2$ PAR DIFFRACTION DE NEUTRONS

Par ANDRÉ HERPIN et PIERRE MERIEL,
Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique, Centre d'Études Nucléaires de Saclay.

Résumé. — Une étude par diffraction de neutrons a montré que la structure de $MnAu_2$, quadratique centrée, peut être considérée comme un empilement, normalement à l'axe *c*, de feuillets de manganèse séparés par deux feuillets d'or. $MnAu_2$ est d'autre part un hélimagnétique : tous les atomes de manganèse d'un même feuillet ont leurs moments parallèles entre eux et normaux à l'axe *c*, ces moments tournant d'un angle constant lorsqu'on passe d'un feuillet au suivant. Un champ parallèle à *c* influe peu sur cette structure magnétique. Par contre un champ normal à *c* modifie brusquement cette structure dès qu'il dépasse une valeur seuil de 9,6 kOe. Une théorie où l'on tient compte des interactions d'échange entre atomes de feuillets premiers et seconds voisins permet de rendre compte quantitativement de toutes les propriétés de cet alliage qui ont été observées.

Abstract. — A study by neutron diffraction has shown that the tetragonal centred structure of $MnAu_2$ can be considered as a packing normally to the *c* axis of layers of manganese separated by two layers of gold. Moreover $MnAu_2$ is a helimagnetic : all atoms of manganese of the same layer have their moments parallel between themselves and normal to the *c* axis, these moments turning by a constant angle when passing from one layer to the next one. A field parallel to *c* has little influence on this magnetic structure. On the other hand a field normal to *c* modifies abruptly this structure as soon as it goes beyond a threshold of 9.6 kOe. A theory, where one takes into account exchange interactions between atoms of first and second neighbouring layers, qantitatively accounts for all the properties of this alloy which have been observed.

I. **Introduction.** — Les alliages or-manganèse ont fait l'objet de nombreuses études. En 1953, Raub, Zwicker et Baur [1] donnent le diagramme du système Au-Mn et mettent en évidence le composé défini $MnAu_2$. En 1956 Meyer et Taglang [2] font une étude magnétique très complète de cet alliage à l'état ordonné. Pour une température inférieure à 90 °C, ce composé se comporte comme un paramagnétique fort dans les champs faibles, puis à partir d'un champ de l'ordre de 10 kOe, son aimantation croît rapidement et tend, difficilement d'ailleurs, vers une saturation au-delà de 20 kOe (*fig.* 1). Ces propriétés sont analogues à celles des composés métamagnétiques étudiés par Néel [3]. Néanmoins, ni la structure cristalline du composé ordonné, ni sa structure magnétique n'étaient connues. Une étude par diffraction de neutrons a été entreprise afin de déterminer l'une et l'autre.

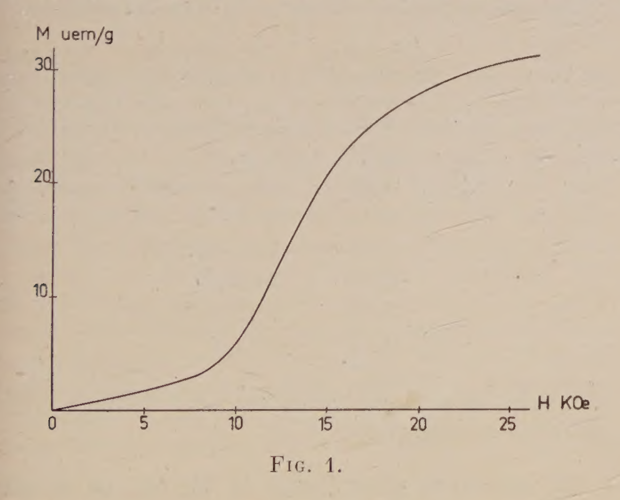


FIG. 1.

1) DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL. — L'or ayant une forte section efficace d'absorption (60 barns pour les neutrons de 1,143 Å de longueur d'onde utilisés), l'échantillon est une plaquette polycristalline d'épaisseur optimum placée en position de transmission symétrique sur l'axe du spectromètre. Cette plaquette a été préparée par A. J. P. Meyer ([1]) qui a vérifié que ses propriétés magnétiques étaient bien identiques à celles de l'échantillon ayant fait l'objet de son étude [2]. La plaquette peut être entourée d'un four permettant de la porter au-dessus du point de Néel. Un électroaimant permet d'appliquer à l'échantillon un champ magnétique dont la direction est soit parallèle au vecteur de diffusion, soit perpendiculaire au plan de diffusion.

Le spectre de diffraction obtenu à la température ordinaire est représenté sur la figure 2*a*. Un spectre réalisé à une température supérieure à la température de Néel permet, par différence ([2]), d'obtenir le

([1]) Nous remercions bien vivement A. J. P. Meyer de l'aide précieuse qu'il nous a apportée.

([2]) Pour obtenir le spectre « magnétique » par différence, il est nécessaire de tenir compte de la dilatation thermique qui déplace les raies vers les petits angles quand la température croît. Nous avons pu déduire de la correction ainsi faite le coefficient moyen de dilatation $\alpha = (25 \pm 4).10^{-6}$, mais la précision n'est pas suffisante pour permettre de déterminer séparément α_a et α_c.

spectre de diffraction « magnétique » (*fig.* 2*c*). L'examen de ces deux spectres montre immédiatement que les raies du spectre à température ordinaire sont soit purement nucléaires, soit purement magnétiques.

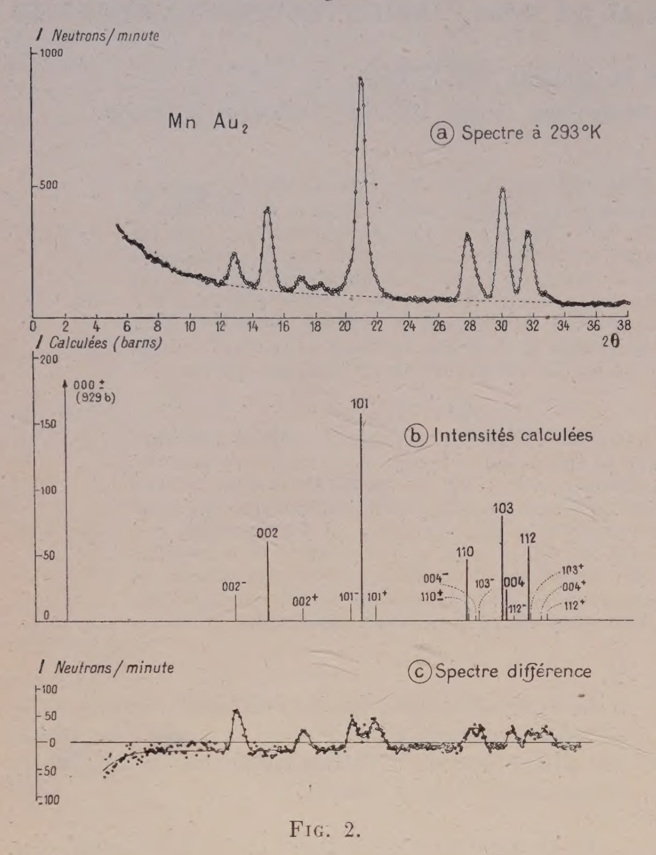


Fig. 2.

2) Structure cristalline de $MnAu_2$. — Les raies nucléaires sont bien expliquées en adoptant la maille quadratique centrée proposée par Smith et Street [4] pour laquelle

$$a = 3{,}369 \text{ Å} \quad \text{et} \quad c/a = 2{,}599.$$

Cette maille est à peu près triple de celle antérieurement proposée pour le composé désordonné par Raub, Zwicker et Baur [1]. En accord avec la densité, chaque maille comprend deux molécules $MnAu_2$. La seule structure compatible avec les valeurs des rayons atomiques de Mn et Au et avec les intensités observées correspond aux positions suivantes des atomes dans la maille :

$$\text{Mn} : 0, 0, 0 \qquad \frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}$$

$$\text{Au} : 0, 0, z \qquad 0, 0, \bar{z} \qquad \frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2} + z \qquad \frac{1}{2}, \frac{1}{2}; \frac{1}{2} - z.$$

Dans une première étude [5] nous avions trouvé z pratiquement égal à 1/3. P. Michel [6] a simultanément déterminé cette structure par diffraction électronique. La valeur du paramètre $z = 0{,}338$ qu'il obtient est certainement plus précise que celle que nous avions proposée, son étude portant sur un nombre beaucoup plus grand de réflexions. Nous avons par la suite utilisé pour le calcul des intensités la valeur ci-dessus du paramètre z.

La structure ainsi obtenue est représentée sur la figure 3. On voit que les atomes de manganèse

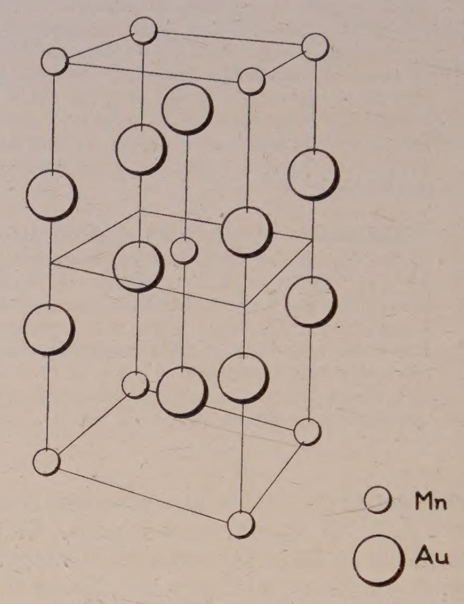


Fig. 3. — Structure de $MnAu_2$.

forment des feuillets perpendiculaires à l'axe c séparés par des feuillets d'or. Dans le tableau I on trouvera les données relatives au voisinage entre atomes de manganèse.

TABLEAU I

Entourage d'un atome de manganèse dans $MnAu_2$

Ordre de voisinage	Distance Mn-Mn en Å	Coordonnées relatives	Nombre de voisins
1	3,37	a, 0, 0	4
2	4,76	a, a, 0	4
3	4,99	a/2, a/2, c/2	8
4	6,74	2a, 0, 0	4
5	6,90	3a/2, a/2, c/2	16
6	7,53	2a, a, 0	8
7	8,38	3a/2, 3a/2, c/2	8
8	8,76	0, 0, c	2

II. **Structure magnétique de $MnAu_2$ en champ nul.** — La détermination de la structure magnétique s'est avérée beaucoup plus délicate. Nous avons vérifié l'origine magnétique des raies du spectre différence en étudiant la variation de leur

intensité en fonction de la température. La figure 4 montre cette variation pour la première de ces raies. L'allure générale est correcte, l'intensité devant être proportionnelle au carré de l'aimantation de

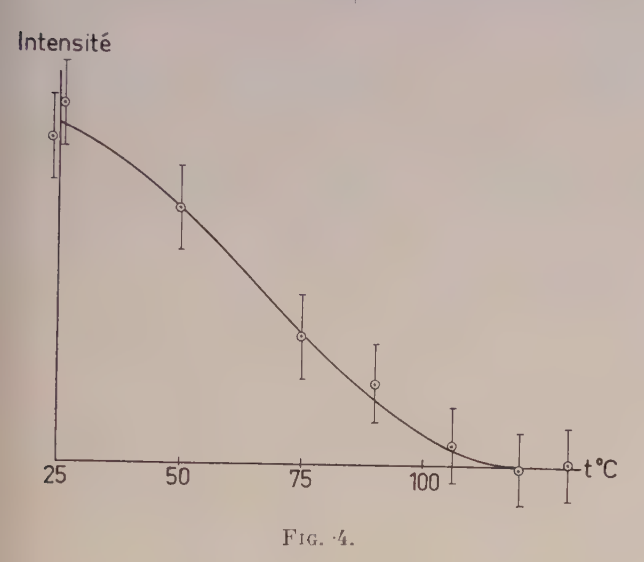


FIG. 4.

chaque sous-réseau. On peut cependant remarquer que l'intensité de cette raie ne s'annule pas au point de Néel, ce qui traduit la persistance d'un ordre à courte distance.

Si l'origine magnétique des raies figurant sur le spectre différence est certaine, il n'en reste pas moins difficile de les indexer dans une maille multiple simple de la maille cristalline. Même si l'on parvient à trouver une telle maille, encore faut-il expliquer les très nombreuses extinctions observées. Nous avons pensé qu'un tel spectre pouvait traduire l'existence d'une structure hélicoïdale, telles que celles décrites par Yoshimori [7] et Villain [8].

1) ANTIFERROMAGÉTISME HÉLICOIDAL. — Nous ferons seulement une application de la théorie générale de l'antiferromagnétisme hélicoïdal que l'on peut trouver en [7] et [8] au cas particulier qui nous intéresse. Comme nous l'avons signalé, on peut considérer que les atomes de manganèse sont disposés en feuillets équidistants, normaux à l'axe quaternaire, distants de $c/2$. Nous supposerons que les interactions d'échange entre atomes d'un même feuillet sont fortement ferromagnétiques, de sorte qu'en dessous de la température de Néel, tous ces atomes ont leurs moments parallèles. Nous pourrons donc traduire l'interaction entre un atome appartenant à un feuillet i et l'ensemble des atomes du feuillet $i + q$ par le champ moléculaire

$$\boldsymbol{H}_{i,q} = n'_q \boldsymbol{M}_{i+q}$$

où $\boldsymbol{M}_j$ représente le moment magnétique d'un atome appartenant au feuillet j. En se limitant aux interactions d'un atome avec les quatre feuillets voisins, le champ moléculaire agissant sur l'atome i prend la forme :

$$\boldsymbol{H}_i = \sum_{q=-2}^{q=+2} \boldsymbol{H}_{i,q} = n'_0 \boldsymbol{M}_i + n'_1(\boldsymbol{M}_{i+1} + \boldsymbol{M}_{i-1}) + n'_2(\boldsymbol{M}_{i+2} + \boldsymbol{M}_{i-2}).$$

Les coefficients de champ moléculaire ainsi introduits sont des moyennes pondérées des intégrales d'échange entre les différents voisins. En désignant par J_p l'intégrale d'échange entre $p^{\text{ièmes}}$ voisins, on a :

$$\left\{\begin{aligned} n'_0 &= \frac{1}{4\mu_B^2}(4J_1 + 4J_2 + 4J_4 + 8J_6 + \dots) \\ n'_1 &= \frac{1}{4\mu_B^2}(4J_3 + 8J_5 + 4J_7 + \dots) \\ n'_2 &= \frac{1}{4\mu_B^2}(J_8 + \dots). \end{aligned}\right. \tag{1}$$

L'énergie correspondante, rapportée à un atome, est alors :

$$W = -\frac{n'_0}{2}\boldsymbol{M}_i^2 - n'_1(\boldsymbol{M}_{i+1} + \boldsymbol{M}_{i-1})\boldsymbol{M}_i - n'_2(\boldsymbol{M}_{i+2} + \boldsymbol{M}_{i-2})\boldsymbol{M}_i.$$

Pour qu'il y ait antiferromagnétisme le champ moléculaire doit être parallèle au moment magnétique $\boldsymbol{M}_i$ et être de module constant. On en conclut que, sauf cas exceptionnels, $\boldsymbol{M}_{i+1}$, $\boldsymbol{M}_{i-1}$ et $\boldsymbol{M}_i$ doivent être parallèles à un plan P, donc que tous les moments magnétiques doivent être parallèles à P. De plus, l'angle φ de $\boldsymbol{M}_{i-1}$ avec $\boldsymbol{M}_i$ est égal à l'angle de $\boldsymbol{M}_i$ avec $\boldsymbol{M}_{i+1}$. Remarquons que ces conclusions ne sont valables que si les différents atomes sont cristallographiquement identiques, donc sont aux nœuds d'un réseau de Bravais, et dans ce cas, le parallélisme des moments à un plan P n'est pas une hypothèse. L'énergie peut alors s'écrire :

$$W = -\frac{n'_0}{2}\mu_0 - 2n'_1\mu_0\cos\varphi - 2n'_2\mu_0\cos 2\varphi.$$

μ_0 étant le moment magnétique d'un atome de manganèse.

En minimisant cette énergie par rapport à φ on trouve trois solutions possibles :

a) $\varphi = 0$: tous les moments sont parallèles. C'est le cas ferromagnétique.

b) $\varphi = \pi$: deux feuillets successifs ont leurs moments antiparallèles. C'est le cas antiferromagnétique simple.

c) φ donné par $\cos\varphi = -n'_1/4n'_2$. Les moments magnétiques sont disposés en hélice. La résultante des moments est encore nulle. On a alors affaire à un antiferromagnétisme d'un type particulier que pour abréger nous appellerons *hélimagnétisme.*

En fonction des coefficients n'_0, n'_1, n'_2, l'énergie a

pour expression dans ces trois cas, en faisant abstraction du terme constant $-\frac{n_0'}{2}\mu_0$:

$$W_f = -2\mu_0(n_1' + n_2')$$
$$W_a = -2\mu_0(-n_1' + n_2')$$
$$W_h = -2\mu_0\left(-\frac{n_1'^2}{8n_2'} - n_2'\right).$$

La figure 5 représente la variation de l'énergie en fonction du rapport $x = n_1/n_2$ dans le cas où n_2

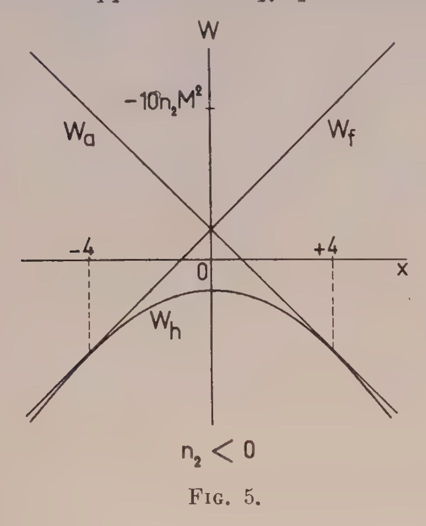


Fig. 5.

est négatif (interactions antiferromagnétiques entre feuillets seconds voisins). On voit que si la solution hélimagnétique existe, ce qui n'est possible que si $|x| < 4$, c'est la solution la plus stable. Pour $x > 4$, la solution stable est antiferromagnétique simple, et ferromagnétique si $x < -4$. Quand n_2' est positif, les seules solutions possibles sont ferro ou antiferromagnétiques, résultat qu'exprime la figure 6.

2) Diffraction des neutrons par un hélimagnétique. — Les formules usuelles donnant le facteur de structure des raies « magnétiques » sont établies dans le cas où les moments magnétiques sont parallèles à une direction unique. Lorsqu'il n'en est pas ainsi, le carré du facteur de structure, rapporté à tout le cristal, est donné par la relation plus générale :

$$|F_c|^2 = 4(\gamma r_0)^2 f(K)^2 \left|\sum_i \left(\frac{(\boldsymbol{S}_i.\boldsymbol{K})\,\boldsymbol{K}}{K^2} - \boldsymbol{S}_i\right).\boldsymbol{s}\exp(i\boldsymbol{K}.\boldsymbol{R}_i)\right|^2 \quad (2)$$

où r_0 est le rayon classique de l'électron, γ le rapport gyromagnétique du neutron, $\boldsymbol{K}$ le vecteur de diffusion, $f(K)$ le facteur de forme magnétique et $\boldsymbol{s}$ le spin du neutron. La somme est étendue à tous les atomes i de spin $\boldsymbol{S}_i$ dont la distance à l'origine est $\boldsymbol{R}_i$.

Pour des neutrons non polarisés cette formule peut se mettre sous la forme :

$$|F_c|^2 = (\gamma r_0)^2 f(K)^2 \sum_{i,j} \boldsymbol{V}_i.\boldsymbol{V}_j \exp(i\boldsymbol{K}.(\boldsymbol{R}_i - \boldsymbol{R}_j))$$

avec

$$\boldsymbol{V}_i = \frac{(\boldsymbol{S}_i.\boldsymbol{K}).\boldsymbol{K}}{K^2} - \boldsymbol{S}_i.$$

Pour un hélimagnétique nous venons de voir que tous les moments magnétiques sont parallèles à un même plan P, et parallèles entre eux à l'intérieur

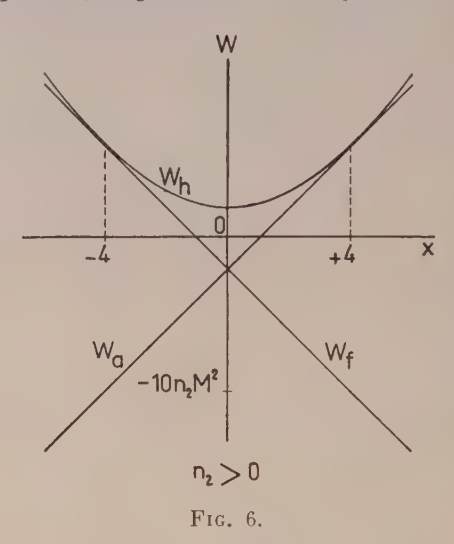


Fig. 6.

d'un même feuillet perpendiculaire à l'axe quaternaire. Le calcul montre alors que $|F_c|^2$ n'est différent de zéro que si :

$$\boldsymbol{K} = \boldsymbol{\tau} \pm 2\frac{\varphi}{c}\boldsymbol{w}$$

$\boldsymbol{w}$ étant le vecteur unitaire de la direction de l'axe quaternaire et $\boldsymbol{\tau}$ un vecteur du réseau réciproque (défini à un facteur 2π près). Dans ces conditions, le carré du facteur de structure, rapporté cette fois à la maille cristalline et non plus à tout le cristal, s'écrit :

$$|F_m|^2 = (\gamma r_0)^2 f(K)^2 S^2\left(1 + \frac{K_N^2}{K^2}\right) \quad (3)$$

où K_N est la projection de $\boldsymbol{K}$ sur la normale au plan P.

C'est dire que l'intensité ne sera différente de zéro que si le vecteur de diffusion a son extrémité en un point de l'espace réciproque se déduisant d'un nœud du réseau polaire par une translation égale à $\pm\frac{2\varphi}{c}\boldsymbol{w}$ (*fig.* 7). Chaque réflexion nucléaire *hkl* sera donc accompagnée de deux satellites magnétiques que nous indexerons *hkl*$^+$ et *hkl*$^-$, le premier correspondant, par convention, au vecteur de diffusion le plus grand. Dans le cas d'un diagramme de poudre, chaque raie nucléaire *hkl*

sera effectivement flanquée de deux satellites magnétiques. Toutefois, les deux satellites d'une raie *hk*0 seront confondus dans un tel diagramme,

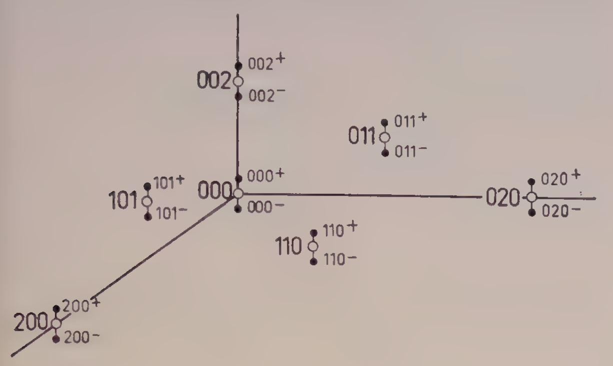


FIG. 7.

les vecteurs de diffusion qui leur correspondent étant égaux. Ce satellite unique sera noté *hk*0±. En particulier, une réflexion 000± doit correspondre au nœud origine du réseau polaire.

3) STRUCTURE MAGNÉTIQUE DE $MnAu_2$. — Le spectre différence représenté sur la figure 2 correspond justement à la description que nous venons de donner. On voit en particulier que chacune des deux raies nucléaires 002 et 101 est accompagné de deux satellites. Pour les raies plus lointaines, l'enchevêtrement des raies est trop grand pour qu'il soit possible de les utiliser. A partir des satellites de 002, on calcule l'angle φ dont les moments magnétiques tournent en passant d'un feuillet au suivant

$$\varphi = 51^{\circ} \pm 1^{\circ}.$$

A l'aide de cette valeur on peut déterminer *a priori* la position des différents satellites. Ces positions sont indiquées sur la figure 2*b*. Sur le spectre (*fig.* 2*a*), on ne voit pas la raie 000± qui devrait apparaître à 2°6′. Elle est beaucoup trop proche du faisceau direct pour pouvoir être observée sans précautions. Nous avons dû pour cela limiter le faisceau direct par un écran de cadmium ; un spectre différence entre 130 °C et la température ordinaire donne le résultat représenté sur la figure 8 La raie observée est très intense, comme le montre la comparaison avec la raie 002− représentée à la même échelle, et apparaît bien à l'angle prévu. Notons en outre qu'aucun harmonique de cette raie n'a été observé, ce qui semble exclure une structure à antiphase périodique qui donnerait également des satellites mais accompagnés d'harmoniques. La structure hélimagnétique de $MnAu_2$ est encore confirmée par la comparaison entre les intensités observées et calculées. Les intensités mesurées ont été portées en échelle absolue par comparaison avec la somme des intensités calculées des deux premières raies nucléaires, pratiquement indépendante de la valeur du paramètre *z*. Le calcul de l'intensité des raies magnétiques a été fait en supposant, par raison de symétrie, que les moments

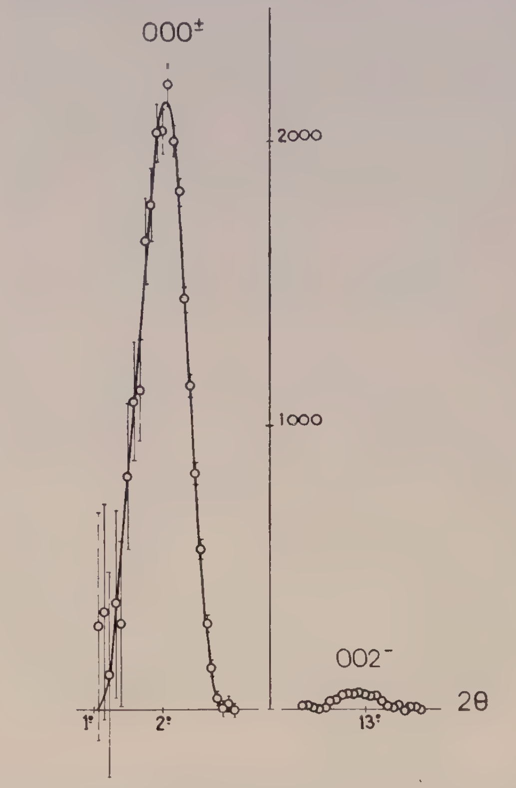


FIG. 8. — Comparaison des raies 000± et 002− de $MnAu_2$.

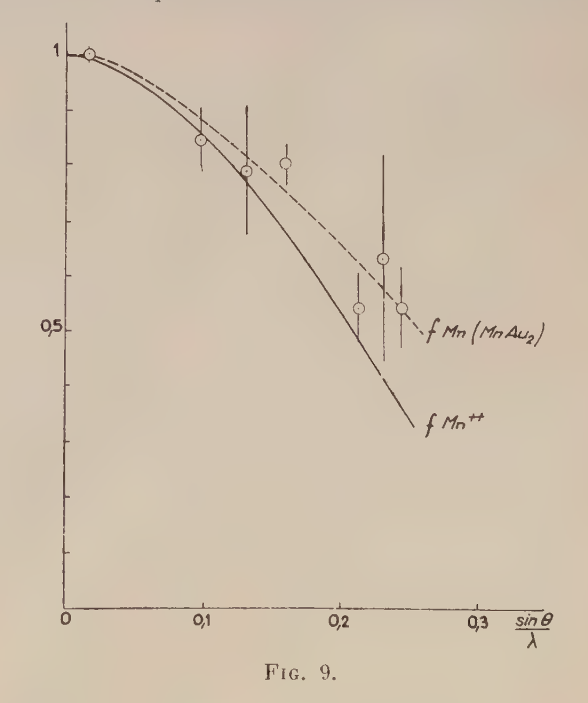


FIG. 9.

magnétiques étaient normaux à l'axe quaternaire, ce qui conduit à remplacer dans la formule (3) K_N

par K_z. Pour déterminer la valeur du moment magnétique d'un atome de manganèse, nous nous sommes servis de la raie $000^{\pm}$ qui est la plus intense et pour laquelle le facteur de forme magnétique est pratiquement égal à 1. On trouve $\mu_0 = 3{,}04\ \mu_B$, valeur un peu plus forte que celle (2,88) déduite par Meyer et Taglang des mesures magnétiques. Le tableau II donne la comparaison entre les intensités observées et calculées en prenant pour facteur de forme magnétique celui de l'ion Mn^{++}. Dans le calcul, nous n'avons pas introduit de facteur de Debye, ce qui n'apporterait qu'une faible correction, les mesures n'allant pas à de grands angles. On voit sur le tableau II que le rapport entre les

TABLEAU II

Comparaison entre les intensités magnétiques calculées et observées

hkl	*I* calc. (barns)		*I* obs. (barns)	I_c/I_0
000±	936		936	
002−	20,6		19,9	1,04
002+	9,8		10,3	0,95
101−	13,0	24,5	34,1	0,72
101+	11,5			
110±	4,0	11,7	14,6	0,80
004−	2,0			
103−	5,7			
112−	3,2		7,7	0,42
103−	3,7	7,3	16,4	0,45
004+	1,1			
112+	2,5			

valeurs théoriques et expérimentales décroît quand l'angle de diffusion augmente. Ceci peut s'expliquer en admettant que le facteur de forme magnétique de l'atome de manganèse dans $MnAu_2$ décroît moins vite que celui de Mn^{++}. La figure 9 donne la variation de ce facteur de forme, déduit de nos mesures, comparé à celui de Mn^{++}.

4) Influence de la température sur la structure magnétique de $MnAu_2$. — Nous avons étudié l'influence de la température sur la structure magnétique. L'échantillon, placé dans un cryostat, était refroidi par un courant d'azote dont on pouvait contrôler la température et le débit. La température de l'échantillon était uniforme à 0,2° près. Au cours d'une expérience, la température de l'échantillon ne variait pas de plus de 2°. Nous avons vérifié que, jusqu'à 87 °K, les spectres de diffraction restaient qualitativement semblables, ce qui semble exclure une modification de la structure magnétique, qui reste hélimagnétique. La position de la raie 002 varie du fait de la dilatation thermique (*fig.* 10). On en déduit la valeur du coefficient de dilatation $\alpha_c = 25 \pm 5\ 10^{-6}$ pratiquement égale à la valeur du coefficient de dilatation moyen déduit des mesures précédentes. La détermination la plus précise de la valeur de l'angle φ entre les moments des atomes de deux feuillets voisins s'obtient à partir de la différence des angles de Bragg des raies 002− et 002 ([8]). La figure 11 montre que la

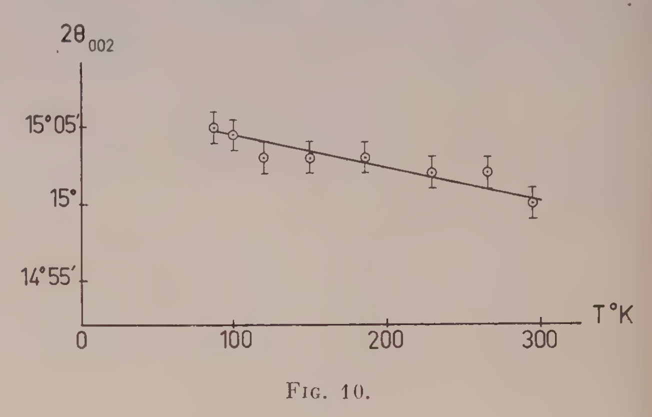


Fig. 10.

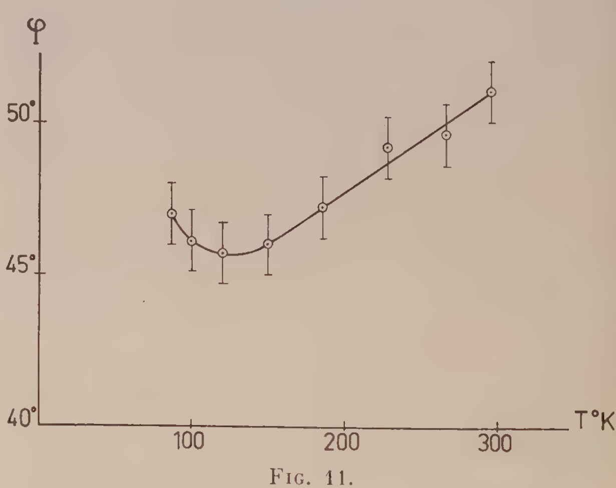


Fig. 11.

variation de l'angle φ avec la température est faible : φ commence par décroître linéairement et passe par un minimum aux environs de 125 °K. Le fait que l'angle φ varie peu avec la température est en accord avec le modèle hélimagnétique utilisé, car φ ne dépend que des coefficients d'échange qui varient peu avec la température. L'existence d'un minimum pour φ montre que la variation de n'_1 et n'_2 ne peut être linéaire en T, ce qui n'a rien de surprenant, d'autant que ces coefficients sont des

([8]) La raie faible qui apparaît entre les raies 002^+ et 101^- (*fig.* 2*a*) est la seule qui ne puisse s'interpréter par les structures nucléaire et magnétique proposées. Son origine nucléaire est certaine : elle ne disparaît pas au-dessus de 90 °C. Elle doit être attribuée à une impureté qu'il ne nous a pas été possible d'identifier. Malheureusement le fait qu'elle soit proche de la raie 002− empêche de pointer cette dernière avec une bonne précision.

moyennes pondérées entre plusieurs coefficients d'échange (relation (1)) dont on ne connaît pas la variation avec la température. La mesure de l'intensité du satellite 002— permet également de déterminer la variation thermique du moment magné-

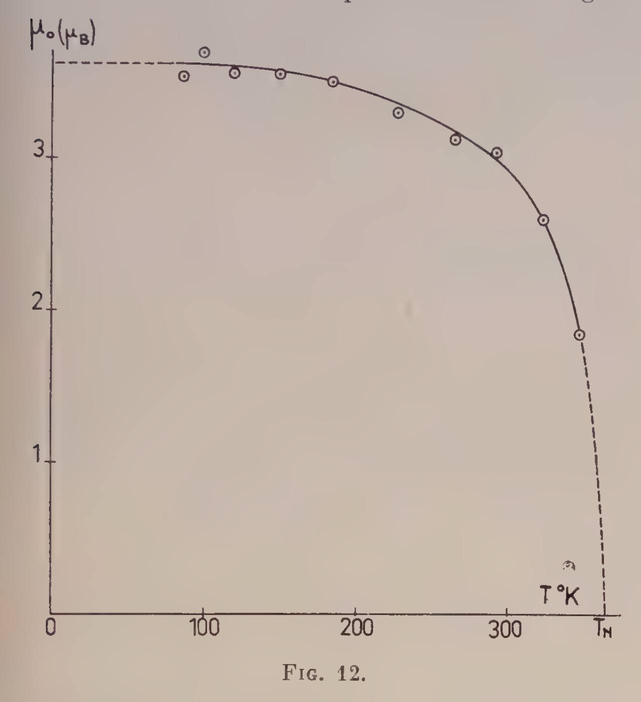


Fig. 12.

tique (*fig.* 12). L'extrapolation au zéro absolu donne une aimantation de 3,6 μ_B par atome de manganèse.

III. **Action d'un champ sur la structure magnétique de $MnAu_2$.** — Nous avons ensuite cherché à expliquer le mécanisme auquel $MnAu_2$ doit ses pro-

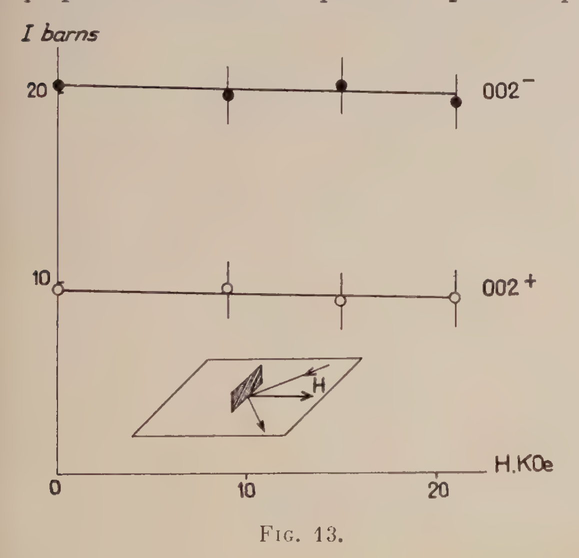


Fig. 13.

priétés métamagnétiques, mécanisme dont nous ne donnerons qu'une théorie approchée. Expérimentalement, ce mécanisme se manifestera par l'influence d'un champ sur l'intensité des raies magnétiques. Une première information intéressante est obtenue en étudiant la variation de l'intensité des raies 002^+ et 002^- en fonction d'un champ appliqué parallèlement à l'axe quaternaire. La figure 13 montre que l'intensité de ces raies varie au maximum de quelques pour cent pour des champs allant jusqu'à 20 kOe. Ceci montre que pour des champs de cet ordre, la direction des moments s'écarte très peu du plan 001. Une telle rigidité doit être attribuée à un champ cristallin très intense, au moins égal à 100 kOe. L'existence d'une aussi forte anisotropie, et la structure magnétique elle-même excluent un mécanisme d'aimantation analogue à celui d'un métamagnétique du type $FeCl_2$ [9].

1) Théorie. — Dans ces conditions, lorsqu'on applique un champ magnétique à un cristal de $MnAu_2$ d'une intensité inférieure à quelques dizaines de kOe, seule la composante de ce champ située dans le plan perpendiculaire à l'axe quaternaire pourra agir sur les moments magnétiques. Il nous suffit donc d'étudier théoriquement l'action d'un champ perpendiculaire à l'axe *c* sur la disposition des moments. On trouve le résultats suivant : selon la valeur du champ, les moments peuvent présenter deux configurations, l'une voisine de la configuration hélimagnétique, l'autre voisine de la configuration ferromagnétique, rigoureusement atteinte pour un certain champ que nous appellerons *champ limite*. On obtiendra la première solution en étudiant la susceptibilité initiale, la seconde en étudiant le champ limite et l'approche à la saturation.

Nous appellerons θ_p l'angle des moments des atomes du $p^{\text{ième}}$ feuillet normal à l'axe *c* avec la direction du champ. L'expression générale de l'énergie est alors, à un terme constant près, proportionnelle à

$$W = -\sum_p [n_1 \cos(\theta_p - \theta_{p-1}) + n_2 \cos(\theta_p - \theta_{p-2})] - \mu_0 H \sum_p \cos\theta_p \quad (4)$$

où $n_i = n'_i \mu_0^2$.

a) *Susceptibilité intiale.* — Dans un champ faible les moments sont peu déplacés par rapport à la configuration hélicoïdale, ce qui s'écrit :

$$\theta_p = \theta_0 + p\varphi + \varepsilon_p \quad (5)$$

où ε_p est petit. Dans ces conditions, l'équation d'équilibre pour le moment $\boldsymbol{\mu}_p$, obtenue en minimisant l'énergie par rapport à θ_p s'écrit d'après (4) :

$$-n_1 \cos\varphi(2\varepsilon_p - \varepsilon_{p-1} - \varepsilon_{p+1}) - n_2 \cos 2\varphi(2\varepsilon_p - \varepsilon_{p-2} - \varepsilon_{p+2}) = \mu_0 H \sin(\theta_0 + p\varphi)$$

équation dont la solution est

$$\varepsilon_p = A \sin(\theta_0 + p\varphi) \quad (6)$$

avec

$$A = \frac{-\mu_0 H}{4\left(n_1 \cos\varphi \sin^2\frac{\varphi}{2} + n_2 \cos 2\varphi \sin^2\varphi\right)}$$

$$= \frac{+\mu_0 H}{16 n_2} \frac{1}{\sin^4\frac{\varphi}{2}(1 + 2\cos\varphi(1+\cos\varphi))}. \quad (7)$$

La valeur moyenne de la projection du moment dans la direction du champ est :

$$\overline{\mu} = \mu_0 \overline{\cos(\theta_0 + p\varphi + \varepsilon_p)}$$

$$= -\mu_0 \overline{\varepsilon_p \sin(\theta_0 + p\varphi)} = -\frac{1}{2}\mu_0 A.$$

On en déduit la susceptibilité par atome :

$$\chi = -\frac{\mu_0^2}{32 n_2} \frac{1}{\sin^4\frac{\varphi}{2}(1 + 2\cos\varphi(1+\cos\varphi))}.$$

L'approximation que nous faisons, et qui se trouve largement justifiée par un calcul plus poussé, est de supposer que l'aimantation varie linéairement avec le champ, quel que soit le champ :

$$M = \chi H \qquad \varepsilon_p = -2\frac{\chi H}{\mu_0}\sin(\theta_0 + p\varphi)$$

le pas de l'hélice gardant la même valeur. On en déduit l'expression de l'énergie, rapportée à un atome :

$$W_1 = -n_1 \cos\varphi - n_2 \cos 2\varphi - \frac{1}{2}\chi H^2 = W_0 - \frac{1}{2}\chi H^2.$$

b) *Champ limite.* — Dans un champ très intense tous les moments magnétiques sont parallèles au champ. Si l'on fait décroître le champ, les moments s'écartent de la direction du champ lorsque celui-ci devient inférieur à un certain *champ limite* H_0 dont on peut calculer l'expression.

Soit η_p l'angle, supposé petit, du moment magnétique $\boldsymbol{\mu}_p$ avec le champ $\boldsymbol{H}$; l'équation d'équilibre du moment $\boldsymbol{\mu}_p$ s'écrit, d'après (4), pour les petites valeurs de η_p :

$$-n_1(2\eta_p - \eta_{p-1} - \eta_{p+1})$$
$$- n_2(2\eta_p - \eta_{p-2} - \eta_{p+2}) = \mu_0 H \eta_p.$$

L'ensemble de ces équations forme un système d'équations linéaires homogènes qui n'admet que la solution $\eta_p = 0$, sauf si $\mu_0 H$ est une valeur propre. Le champ limite H_0 sera donc la valeur propre la plus grande de ce système dont les fonctions propres sont :

$$\eta_p = \zeta_1 \sin(p\psi + \delta).$$

La valeur propre correspondant à ψ est

$$\mu_0 H(\psi) = -2n_1(1 - \cos\psi)$$
$$- 2n_2(1 - \cos 2\psi) = -2(n_1 + n_2) - W_0(\psi).$$

où $W_0(\psi)$ est l'énergie du système hélimagnétique, l'angle des moments de deux feuillets voisins étant ψ. $H_0(\psi)$ est donc maximum quand $W_0(\psi)$ est minimum, c'est-à-dire lorsque ψ est égal à l'angle φ défini par $\cos\varphi = -n_1/4n_2$. On a donc :

$$H_0 = -\frac{16 n_2}{\mu_0}\sin^4\frac{\varphi}{2}. \quad (8)$$

c) *Approche à la saturation.* — Nous allons maintenant calculer l'aimantation pour des valeurs du champ voisines de H_0, c'est-à-dire la susceptibilité différentielle au voisinage de la saturation. Dans le paragraphe précédent nous avons écrit l'équation d'équilibre du moment η_p sous la forme linéaire valable seulement pour des angles η_p infiniment petits. Sinon cette équation s'écrit :

$$-n_1(\sin(\eta_p - \eta_{p-1}) + \sin(\eta_p - \eta_{p+1}))$$
$$- n_2(\sin(\eta_p - \eta_{p-2}) + \sin(\eta_p - \eta_{p+2})) = \mu_0 H \sin\eta_p. \quad (9)$$

La non-linéarité de cette équation entraîne deux conséquences : une limitation de l'amplitude η_p et l'apparition d'harmoniques, ce qui est habituel pour les systèmes non linéaires. Les termes anharmoniques étant des fonctions impaires de η_p, seuls apparaîtront les harmoniques impairs et le développement de η_p s'écrira :

$$\eta_p = \zeta_1 \sin(p\varphi + \delta) + \zeta_3 \sin(3p\varphi + \delta') + \ldots \quad (10)$$

où ζ_1, ζ_3, ... sont des fonctions de $H_0 - H$. Nous nous limiterons au calcul du premier coefficient $\zeta_1(H)$ qui est de degré le plus bas en $H_0 - H$, et même au premier terme de ce développement. Pour cela, utilisons un développement de l'équation (9)

$$-n_1(2\eta_p - \eta_{p-1} - \eta_{p+1})$$
$$- n_2(2\eta_p - \eta_{p-2} - \eta_{p+2}) - \mu_0 H_0 \eta_p$$
$$+ \frac{n_1}{6}[(\eta_p - \eta_{p-1})^3 + (\eta_p - \eta_{p+1})^3]$$
$$+ \frac{n_2}{6}[(\eta_p - \eta_{p-2})^3 + (\eta_p - \eta_{p+2})^3]$$
$$+ \frac{\mu_0 H_0}{6}\eta_p^3 = -\mu_0(H_0 - H)\eta_p.$$

Si l'on remplace η_p par $\zeta_1 \cos(p\varphi + \delta)$, la première ligne s'annule identiquement par définition de H_0 ; la seconde ligne nous donne des termes en $\zeta_1^3 \cos(p\varphi + \delta)$ et des termes en $\zeta_1^3 \cos 3(p\varphi + \delta)$, ces derniers devant être compensés par les termes provenant de $\zeta_3 \cos(3p\varphi + \delta')$. Ceci montre tout d'abord que le second coefficient ζ_3, proportionnel

à ζ_1^2 est d'un ordre supérieur en $H_0 - H$. En égalant les termes en $\cos(p\varphi + \delta)$, on trouve :

$$\zeta_1^3 f(\varphi) = \mu_0 (H_0 - H) \zeta_1$$

avec

$$f(\varphi) = \frac{\mu_0 H_0}{8} (2 + (1 + 2 \cos \varphi)^2) \quad (11)$$

d'où

$$\zeta_1 = \sqrt{\frac{\mu_0 (H_0 - H)}{f(\varphi)}}. \quad (12)$$

L'aimantation correspondante est donc

$$M = \mu_0 \overline{\cos \eta_p} = \mu_0 \overline{\left(1 - \frac{1}{2} \eta_p^2\right)} = \mu_0 \left(1 - \frac{1}{4} \zeta_1^2\right)$$

ou

$$M = \mu_0 - \frac{\mu_0^2 (H_0 - H)}{4 f(\varphi)}.$$

On voit donc qu'au voisinage de la saturation, l'aimantation varie linéairement avec le champ magnétique. Le calcul plus précis montre que cette approximation reste bonne, même pour des valeurs de $H_0 - H$ qui ne sont plus petites. En nous limitant à ce premier terme, l'énergie s'écrit :

$$W_2 = \mu_0 H_0 \left\{ \frac{1 - 4 \cos \varphi}{16 \sin^4 \frac{\varphi}{2}} - \frac{H}{H_0} - \frac{2}{2 + (1 + 2 \cos \varphi)^2} \left(1 - \frac{H}{H_0}\right)^2 \right\}.$$

d) *Structure magnétique de $MnAu_2$ en présence d'un champ.* — D'après ce qui précède nous pouvons nous représenter l'action sur $MnAu_2$ d'un champ normal à l'axe c de la manière suivante : lorsque le champ croît à partir de zéro, la configuration hélimagnétique de départ se déforme légèrement. Pour une certaine valeur du champ, que nous appellerons le *champ seuil*, la configuration des moments doit changer brusquement et devenir voisine de la configuration ferromagnétique. Quand le champ continue d'augmenter, les moments tendent à être parallèles, et le sont dès que le champ atteint la valeur du champ limite.

Le problème que nous devons résoudre maintenant est le suivant : quelles sont les configurations stables pour les différentes valeurs du champ — ce qui revient à rechercher les lois de variation $\theta_p = \theta_p(H)$ — et en particulier quelle est la valeur du champ seuil.

Les premiers termes du développement de $\theta_p(H)$ pour les deux configurations possibles ont été donnés aux paragraphes *a*) (formules 5, 6, 7) et *c*) (formules 10, 11, 12) précédents, et peuvent être utilisés dans une première approximation. On peut aussi, à cette même approximation, calculer le rapport $\frac{H_s}{H_0}$ du champ seuil au champ limite en égalant les valeurs des énergies correspondant aux deux configurations. Si l'on pousse les développements aux termes d'ordre supérieurs en H, on voit que ces termes décroissent si rapidement que la première approximation est largement suffisante. Nous nous en sommes encore assurés par un calcul numérique : la valeur de φ étant très voisine de $2\pi/7$,

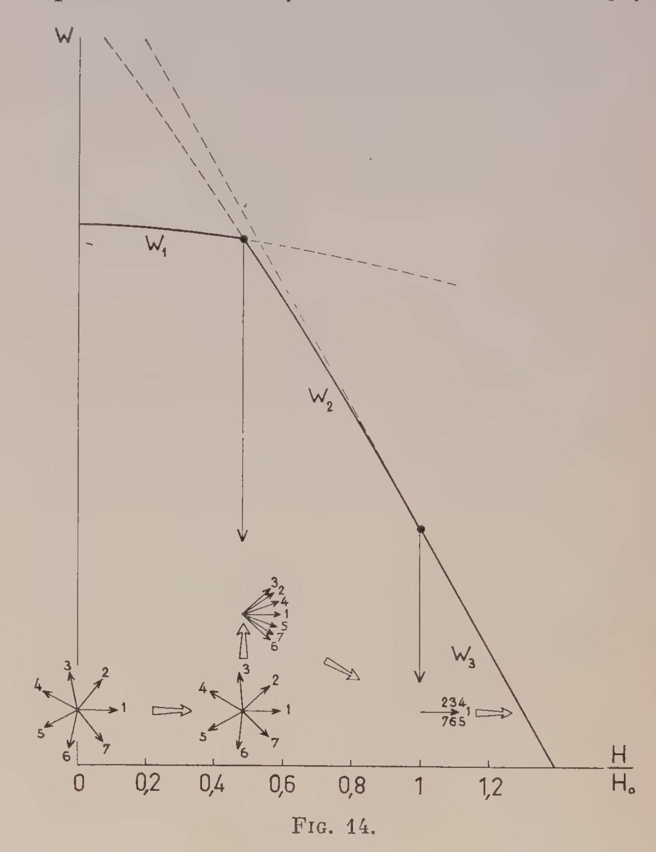


Fig. 14.

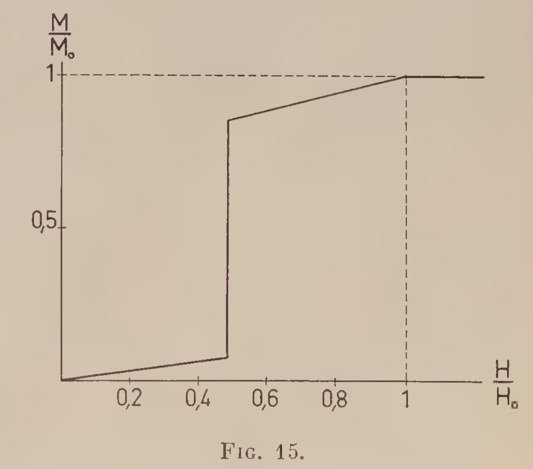


Fig. 15.

il est possible, avec cette valeur, de résoudre, grâce à un ordinateur électronique, le système des sept équations $\partial W / \partial \theta_p = 0$ ([4]). Le résultat confirme ce que nous attendions.

([4]) Nous remercions la Section de Calcul Électronique Arithmétique du Centre d'Études Nucléaires de Saclay à qui nous devons ces calculs.

La figure 14 donne ce résultat. On voit que pour $H_s = 0{,}485\ H_0$ l'énergie de la deuxième configuration devient inférieure à celle de la première. Il y a donc pour cette valeur du champ un saut brusque de la première configuration à la seconde. L'arrangement des moments magnétiques des sept feuillets successifs est représentée à la partie inférieure de la figure pour $H = 0$, H_s, H_0.

La figure 15 représente l'aimantation d'un feuillet en fonction du champ appliqué dans le plan du feuillet. La comparaison avec la courbe d'aimantation expérimentale d'un échantillon polycristallin (*fig.* 1) suggère une valeur de H_s de l'ordre de 10 kOe.

2) Étude par diffraction de neutrons de l'influence du champ sur la structure magnétique de $MnAu_2$. — Si le mécanisme que nous venons de proposer est exact on doit s'attendre à modifier considérablement l'intensité d'une raie satellite lorsque la composante du champ dans le plan des moments magnétiques est importante. En effet quand cette composante atteint la valeur du champ limite la raie satellite doit disparaître, la saturation ferromagnétique étant atteinte. On peut donc penser que, quand cette composante atteindra la valeur du champ seuil, pour laquelle la configuration quasi-hélimagnétique passe à la configuration quasi-ferromagnétique, l'intensité de la raie subira une chute brutale. Ainsi que nous l'avons déjà signalé, la courbe d'aimantation suggère une valeur du champ seuil de l'ordre de 10 kOe, de sorte que l'on peut espérer mettre aisément en évidence ces variations d'intensité, pourvu que le champ appliqué fasse un angle α assez faible avec le plan des moments magnétiques.

En disposant le champ parallèlement au vecteur de diffusion, on ne peut espérer observer cet effet sur les raies 002^+ et 002^-, le champ étant alors normal au plan des moments magnétiques. C'est bien ce que nous avons observé. Par contre, avec la même disposition du champ par rapport au vecteur de diffusion, la situation est beaucoup plus favorable pour les satellites 101^+ et 101^-, l'angle α entre le vecteur de diffusion (donc le champ), et le plan des moments étant petit dans les deux cas. La composante $H \cos \alpha$ du champ dans le plan des moments est en effet égale à $0{,}964\ H$ pour 101^- et $0{,}896\ H$ pour 101^+. La figure 16 donne le résultat de cette expérience. On voit que l'intensité de ces raies subit bien une décroissance rapide dès que le champ atteint 10,2 kOe pour 101^- et 10,7 kOe pour 101^+.

Mais il est également possible de mettre en évidence le changement de configuration des moments dans leur plan sur les satellites 002^- et 002^+, si l'on dispose le champ non parallèlement au vecteur de diffusion, mais normal au plan de diffusion, le champ étant alors parallèle au plan des moments.

La figure 17 donne le résultat de l'expérience sur le satellite 002^-. Le satellite 002^+ donne un résultat absolument identique. La valeur du champ pour laquelle s'amorce la chute d'intensité est égale cette fois à 9,5 kOe. Cette valeur doit être considérée

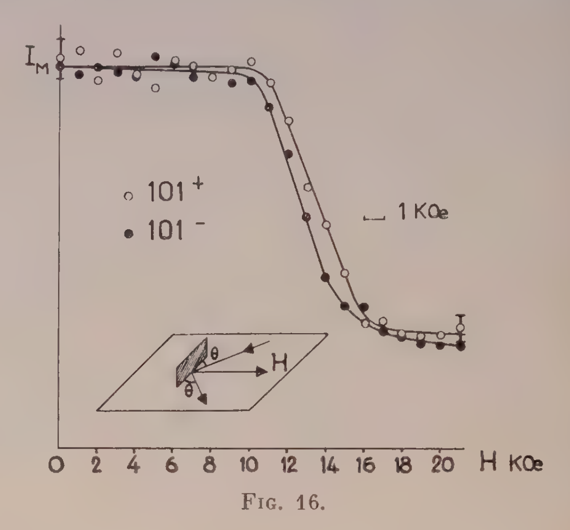


Fig. 16.

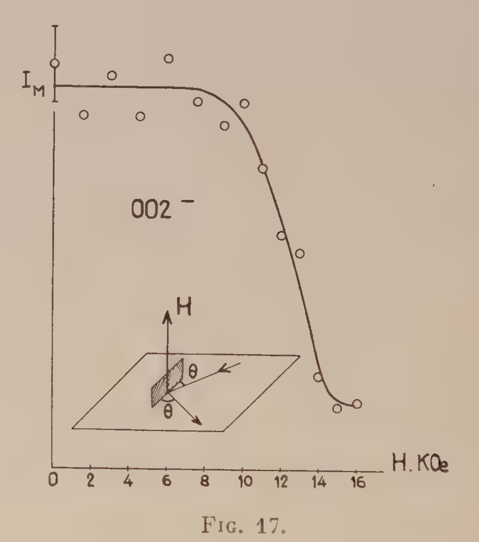


Fig. 17.

comme la valeur du champ seuil H_s et doit en principe coïncider avec les valeurs des projections $H'_s \cos \alpha$ des champs seuils « apparents » H'_s obtenus pour les réflexions 101^- et 101^+, Le tableau III montre qu'il en est bien ainsi. La valeur moyenne

TABLEAU III

Détermination de la valeur du champ seuil

hkl	$002^\pm$	101^+	101^-
H'_s	9,5	10,7	10,2
H_s	9,5	9,6	9,8

du champ seuil qu'on en déduit, 9,6 kOe, est en bon accord avec celle que laissait prévoir la courbe d'aimantation.

On peut en outre, avec la même disposition du champ, avoir la preuve qu'on tend bien, dans les champs forts, vers une saturation ferromagnétique. Il suffit pour cela d'étudier l'influence du champ sur l'intensité de la réflexion 002, car, lorsque la saturation ferromagnétique est atteinte, à l'intensité nucléaire de cette réflexion doit s'ajouter une composante magnétique qui, le calcul le montre, doit atteindre 46 % de la composante nucléaire.

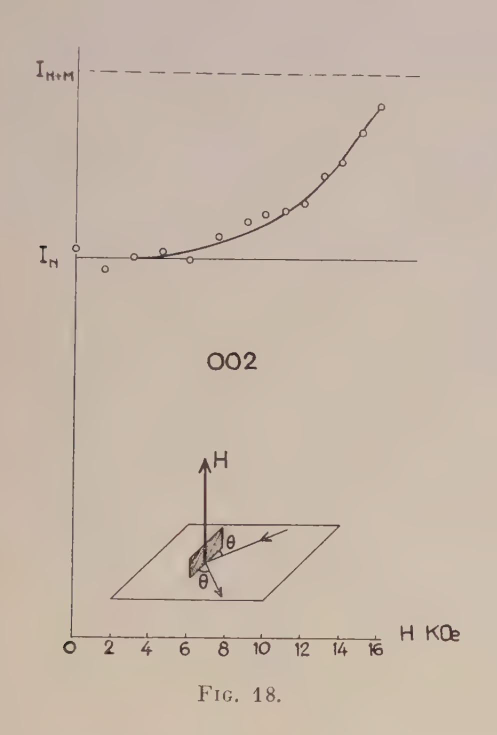


Fig. 18.

La figure 18 montre l'effet observé qui confirme ces prévisions.

On peut rendre théoriquement compte de la variation d'intensité des satellites magnétiques avec le champ observé. Nous supposerons toujours que les moments magnétiques ne peuvent tourner que dans le plan des feuillets de manganèse, et que la périodicité de la structure magnétique correspond à N feuillets. En appelant θ_j l'angle entre les momoments des atomes du feuillet j avec la direction de la projection H' du champ H sur le plan du feuillet, une application de la relation (2) donne aisément l'expression du facteur de structure pour N feuillets :

$$F^2 = f(K)^2\,(\gamma r_0)^2\,S^2$$

$$\left\{\frac{K_N^2}{K^2}\left[\sum_{j=1}^{N}\cos\theta_j\cos j\varphi\right]^2 + \left[\sum_{j=1}^{N}\sin\theta_j\sin j\varphi\right]^2\right\}.$$

D'où le rapport de l'intensité de la raie pour la valeur H du champ à l'intensité en champ nul :

$$\frac{I(H)}{I(0)} = \frac{\dfrac{K_N^2}{4K^2}\Gamma^2 + \Sigma^2}{N^2\dfrac{K_N^2}{K^2} + 1}$$

avec

$$\Gamma = \sum_{j=1}^{N}\cos\theta_j(H)\cos j\varphi$$

$$\Sigma = \sum_{j=1}^{N}\sin\theta_j(H)\sin j\varphi.$$

Ce rapport a été calculé numériquement dans les trois cas correspondant à nos expériences sur 002^-, 101^- et 101^+. La figure 19*a* donne le résultat de ce calcul.

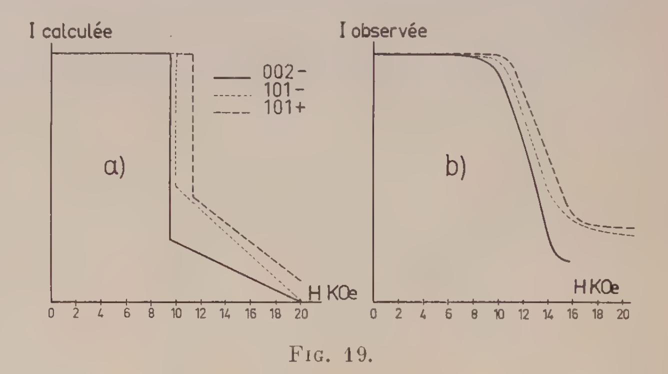


Fig. 19.

La comparaison avec la figure 19*b* où sont superposées les trois courbes expérimentales montre que l'expérience est en bon accord avec les prévisions. Le fait que la chute d'intensité pour la valeur du champ seuil soit plus progressive que prévu peut s'interpréter par l'existence d'un champ local équivalent à un champ démagnétisant, qui serait d'après les courbes expérimentales, de l'ordre de 5 kOe.

Si l'on se reporte maintenant aux grandeurs que nous avons introduites au cours des calculs, nous voyons qu'il est possible de les évaluer à la température ordinaire où l'expérience nous a donné $H_s = 9{,}6$ kOe. La résolution numérique des équations $W_1 = W_2$ nous ayant conduit à $H_s = 0{,}485\,H_0$ on en déduit la valeur du champ limite : $H_0 = 19{,}8$ kOe. On peut ensuite, par application de la relation (8) obtenir la valeur des coefficients d'échange :

$$n_2 = \frac{-\mu_0 H_0}{16\sin^4\varphi/2} = -1{,}02\ 10^{-15}\ \text{erg}$$

ce qui équivaut à une température de — 7,3 °K, et

$$n_1 = -4n_2\cos\varphi = +2{,}56\ 10^{-15}\ \text{erg.}\quad (18{,}2\ °\text{K}).$$

3) Forme de la courbe d'aimantation pour un polycristal. — Par diffraction de neutrons nous avons pu obtenir les valeurs du champ seuil et du moment magnétique des atomes de manganèse à la température ordinaire. Il est alors possible de calculer en valeur absolue, avec le modèle que nous avons utilisé, l'aimantation d'un échantillon polycristallin en fonction du champ appliqué, afin de vérifier si le résultat est en accord avec l'expérience (*fig.* 1). Dans ce calcul, on suppose toujours que la seule composante du champ susceptible de faire varier l'aimantation d'un cristallite est la composante normale à l'axe c de ce cristallite. L'aimantation varie avec cette composante suivant la loi représentée sur la figure 15, et lui est constamment parallèle. Cette loi, nous l'avons déjà signalé, est représentée avec une très bonne approximation par

$$\begin{cases} \dfrac{M}{M_0} = \chi H \text{ si } H < H_s \\ \dfrac{M}{M_0} = (1-\chi') H_0 + \chi' H \text{ si } H_s \leqslant H \leqslant H_0 \\ \dfrac{M}{M_0} = 1 \quad \text{si } H \geqslant H_0. \end{cases}$$

En supposant les cristallites orientés au hasard, on trouve aisément :

$$\frac{M}{M_0} = \chi H \int_0^{\sin^{-1}(H_s/H)} \sin^3 \theta \, d\theta + \int_{\sin^{-1}(H_s/H)}^{\sin^{-1}(H_0/H)} [(1-\chi') H_0 + \chi' H \sin\theta] \sin^2\theta \, d\theta + \int_{\sin^{-1}(H_0/H)}^{\pi/2} \sin^2 \theta \, d\theta.$$

Les termes successifs de cette somme correspondant, dans l'ordre, aux contributions des cristallites orientés de telle sorte que la composante du champ normale à leurs axes c soit inférieure à H_s, comprise entre H_s et H_0, et supérieure à H_0.

Le calcul numérique conduit à la courbe représentée en trait plein sur la figure 20. La comparaison avec la courbe expérimentale reportée sur la même figure, en tirets, confirme la valeur du modèle proposé.

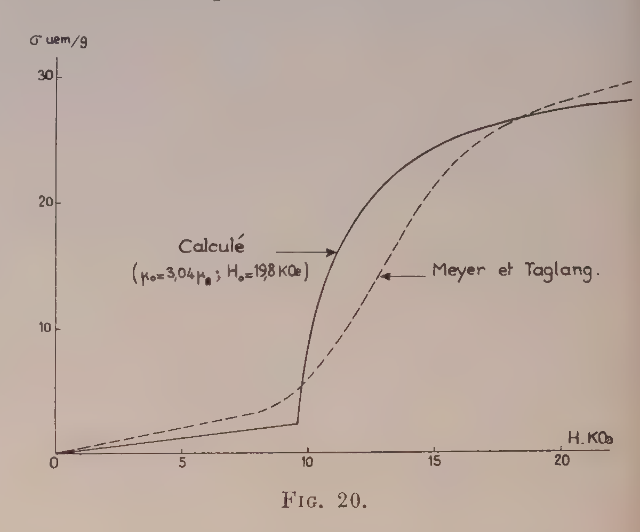


Fig. 20.

La croissance trop lente de la courbe expérimentale, immédiatement après le champ seuil, est à rapprocher de la chute d'intensité progressive observée pour les intensités des satellites magnétiques. Le fait que la susceptibilité initiale soit inférieure à la susceptibilité observée peut s'expliquer par l'existence d'un paramagnétisme constant dont nous n'avons évidemment pas tenu compte. En outre, aux champs élevés, il est certain que la courbe théorique doit remonter, dès que le champ devient assez intense pour faire sortir les moments magnétiques du plan des feuillets.

Manuscrit reçu le 4 janvier 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Raub (E.), Zwicker (U.) et Baur (H.), *Z. Metall.*, 1953, **44**, 312.

[2] Meyer (A. J. P.) et Taglang (P.), *a) J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 457. *b)* Colloque National de magnétisme, Strasbourg, juillet 1957.

[3] Néel (L.), *a)* 10e Conseil de Physique Solvay, R. Stoops, édit., Bruxelles, 1955, 251. *b) C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 1549.

[4] Smith (J. H.) et Street (R.), *Proc. Phys. Soc.*, 1957, B **70**, 1089.

[5] Herpin (A.), Meriel (P.) et Meyer (A. J. P.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 3170.

[6] Michel (P.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 2632.

[7] Yoshimori (A.), *J. Physic. Soc.*, Japan, 1959, **14**, 807.

[8] Villain (J.), *J. Phys. Chem. Solids*, 1959, **11**, 303.

[9] Koehler (W. C.), Wilkinson (M. K.), Cable (J. W.) et Wollan (E. O.), *J. Physique Rad.*, 1959, **20**, 180.

ÉTUDE DES RÉACTIONS PRODUITES PAR DES IONS DE ^{6}Li SUR LE BÉRYLLIUM

Par C. LEMEILLE, L. MARQUEZ (*), N. SAUNIER,
Section de Physique Nucléaire à Basse Énergie, C. E. N., Saclay.
et M. COSTE,
Laboratoire de Physique Nucléaire, Faculté des Sciences de Bordeaux.

Résumé. — Nous avons étudié les réactions nucléaires produites par les ions de ^{6}Li sur le béryllium, avec énergie variable jusqu'à 2 MeV. Nous indiquons les résultats obtenus avec des scintillateurs, des plaques nucléaires et des jonctions. Les mécanismes possibles des réactions observées sont discutés.

Abstract. — We have studied the nuclear reactions produced by ^{6}Li ions of energy up to 2 MeV on Be. The results obtained by scintillation counters, nuclear plates and junctions are presented. Possible reaction mechanisms are discussed.

I. **Introduction.** — Nous avons utilisé le Van de Graaff de 2 MeV de Saclay pour accélérer, selon la technique de Allison et ses collaborateurs [1], des ions ^{6}Li. Dans un premier travail, nous avons étudié les réactions nucléaires produites par ces ions sur une cible de ^{9}Be [2].

Nous avions trouvé des raies γ de forte intensité qui correspondaient au premier état excité de ^{7}Li de 479 keV et au premier état excité de ^{10}B de 717 keV. Nous avions également mis en évidence des γ de plus faible intensité.

Dans les lignes qui suivent nous exposons les résultats obtenus dans la suite de nos expériences.

II. **Observation du spectre γ avec un scintillateur.** — Un détecteur muni d'un scintillateur NaI(Tl) de 3,8 cm de diamètre et de 5 cm de hauteur nous a permis d'enregistrer le spectre de rayons γ émis sur un sélecteur R. I. D. L. à 100 canaux, précédé du dispositif électronique usuel. Le compteur était placé à 0° par rapport au faisceau et à 3 cm d'une cible épaisse de béryllium. En faisant varier le gain, nous avons observé différentes raies γ d'énergies plus fortes. Les résultats obtenus sont notés sur les figures 1 et 2.

La raie de 1 010 keV provient probablement de la transition entre le deuxième et le premier état excité de ^{10}Be. Celle de 2 110 keV peut provenir, soit du premier état excité de ^{11}B, soit du troisième état excité de ^{10}B, soit du premier état excité de ^{13}C de 3 090 keV, car

$$h\nu_0 - 2mc^2 = (3\,090 - 1\,022)\text{ keV} = 2\,068\text{ keV}.$$

Nous observons une raie de 2 700 keV qui pourrait être un mélange de Compton et du pic de 3 090 keV avec une perte d'un seul photon d'annihilation. La raie trouvée à 3 160 keV semble correspondre au pic de 3 090 keV. Les intensités des

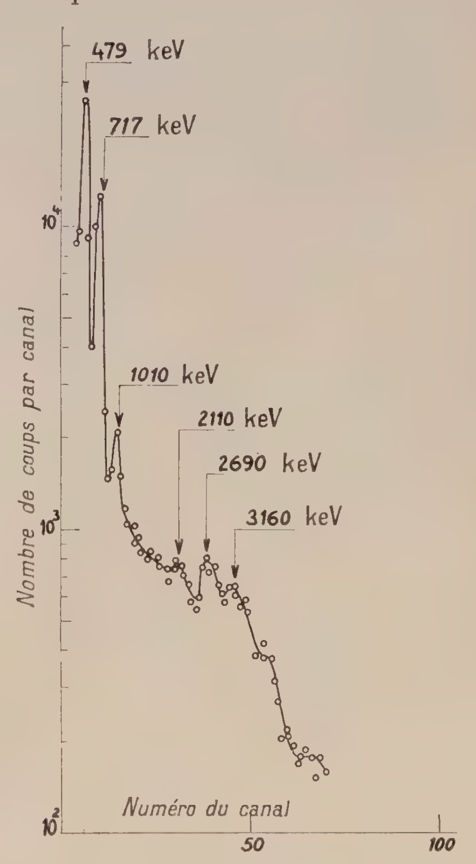


Fig. 1. — Spectre de rayons γ de 300 keV à 4 000 keV provenant de la réaction du ^{6}Li de 2,0 MeV sur ^{9}Be.

autres raies γ sont, compte tenu des efficacités relatives, au maximum quatre fois plus faibles que celle de 479 keV. Les intensités des raies de 479 keV

(*) Chercheur de la Comissao Nacional de Energia Nuclear. Professeur du Centro Brasileiro de Pesquisas Fisicas, en stage au Centre d'Études Nucléaires de Saclay.

et 717 keV ont été mesurées en fonction de l'énergie de ^{6}Li. Ces mesures ont été faites par intervalles de 0,05 MeV dans un domaine d'énergie compris entre 1 et 2 MeV. Nous avons utilisé une

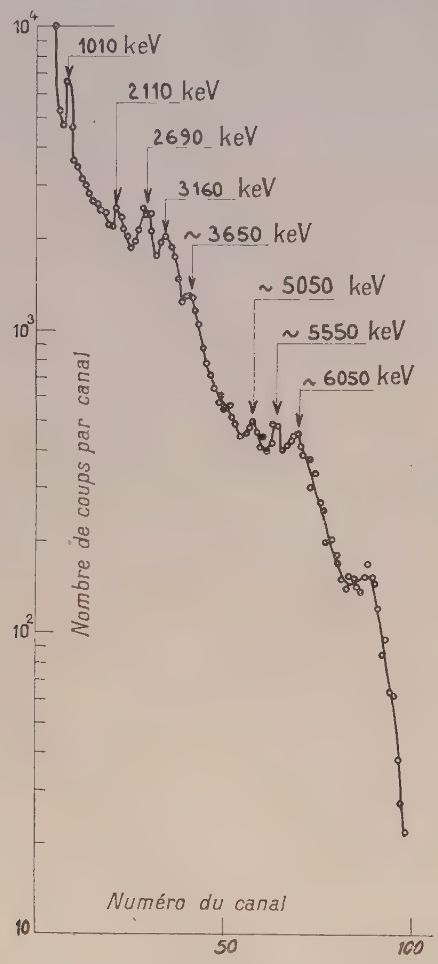


Fig. 2. — Spectre de rayons γ de 1 000 keV à 7 000 keV provenant de la réaction du ^{6}Li de 2,0 MeV sur ^{9}Be.

cible mince de béryllium déposé sur tantale. Cette cible était placée dans une chambre reliée à un intégrateur indiquant le nombre de microcoulombs déposés. Les courbes de la figure 3 sont tracées à partir des résultats obtenus. La cible utilisée étant mince, les ordonnées sont proportionnelles à la section efficace. Nos résultats sont d'autre part en accord avec les courbes théoriques fournies par le calcul du facteur de Gamow. Pour la raie de 479 keV, dans le cas de l'irradiation d'une cible épaisse par le ^{6}Li de 2 MeV, le rendement est de l'ordre de 5×10^4 gamma/microcoulomb de Li^+, l'erreur commise étant de 50 %.

Nous avons mesuré le rapport des intensités des raies de 479 keV et 717 keV pour différentes valeurs de l'énergie de ^{6}Li. La mesure de ce rapport a été faite plusieurs fois pour chaque point avec une bonne précision, les deux raies étant enregistrées sur le même spectre et au cours de la même irradiation. Le tableau I a été établi à partir des résultats obtenus après correction d'efficacité, celle-ci restant la même pour toutes les mesures. Nous remarquons que le rapport considéré est

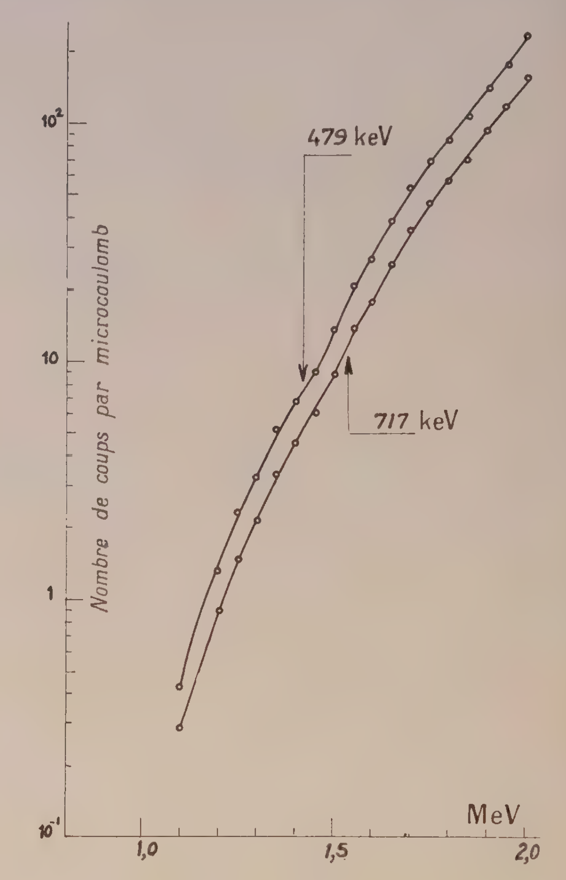


Fig. 3. — Rendement des raies de 479 keV et 717 keV en fonction de l'énergie de ^{6}Li sur une cible mince de ^{9}Be.

constant dans l'étroite limite des erreurs expérimentales.

Nous avons également mesuré l'effet Doppler-Fizeau produit sur la raie de 479 keV. Pour effec-

TABLEAU I

Énergie du ^{6}Li (MeV)	Rapport $\frac{I(479 \text{ keV})}{I(717 \text{ keV})}$	Déviation standard
—	—	—
1,1	,93	,19
1,2	1,05	,06
1,3	,99	,04
1,4	1,01	,02
1,5	,96	,02
1,6	,98	,02
1,7	,97	,02
1,8	,98	,02
1,9	1,01	,02
2,0	1,05	,04

tuer cette mesure, le compteur de NaI a été placé à 0° et à 90° par rapport au faisceau et à 4 cm de la cible. On a trouvé un déplacement de la raie positif avec $\beta_L = (0,77 \pm 0,14) \times 10^{-2}$. L'énergie moyenne des ^{6}Li qui produisent la réaction étant de 1,8 MeV, la vitesse du centre de masse est donnée par $\beta_0 = 1,02 \times 10^{-2}$. Donc en moyenne, le ^{7}Li dans le centre de masse sort vers l'arrière avec une faible composante moyenne de la vitesse dans la direction contraire du faisceau et telle que

$$\beta_c = -(0,25 \pm 0,14) \times 10^{-2}.$$

III. **Observation des particules chargées au moyen de plaques nucléaires.** — L'étude des particules chargées provenant de la réaction a été faite au moyen de plaques nucléaires et de jonctions. Pour déterminer la réaction qui produit le ^{7}Li et le ^{10}B, nous pensions examiner les particules chargées émises préférentiellement dans le demi-cône avant avec une énergie de quelques MeV.

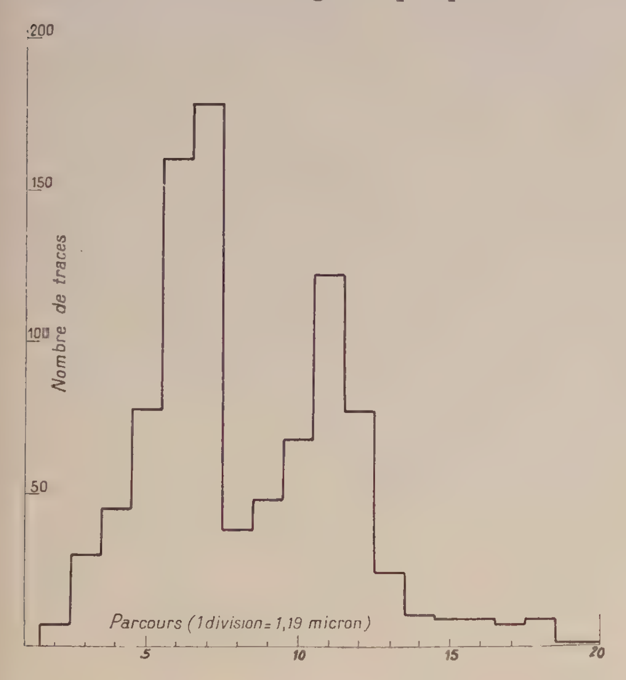


Fig. 4. — Histogramme des particules chargées provenant de la réaction de ^{6}Li de 2,0 MeV sur ^{9}Be, observé à 42°. Le premier pic est celui de ^{4}He et le deuxième celui de ^{3}He de la réaction $^6\text{Li} + {}^1\text{H} = {}^4\text{He} + {}^3\text{He}$.

La réaction $^6\text{Li} + {}^1\text{H} = {}^3\text{He} + {}^4\text{He}$ qui se produit à basse énergie nous a empêchés d'effectuer les observations dans cette région. L'hydrogène qui provoque cette réaction pourrait provenir des matières organiques des joints et de la pompe à diffusion. Les intensités des pics ^{3}He et ^{4}He sont environ 10 fois plus élevées que celles des réactions recherchées. La figure 4 représente l'histogramme obtenu avec une plaque à 42°.

IV. **Observation des particules chargées au moyen de jonctions.** — Il est possible d'effectuer des mesures dans le domaine de 90° à 180° sans être gêné par la réaction due à l'hydrogène. Des observations ont été faites dans cette région avec un compteur à jonction.

Dispositif expérimental. — Nous avions à notre disposition une jonction R. C. A. au silicium type p de 20 mm², et le matériel électronique

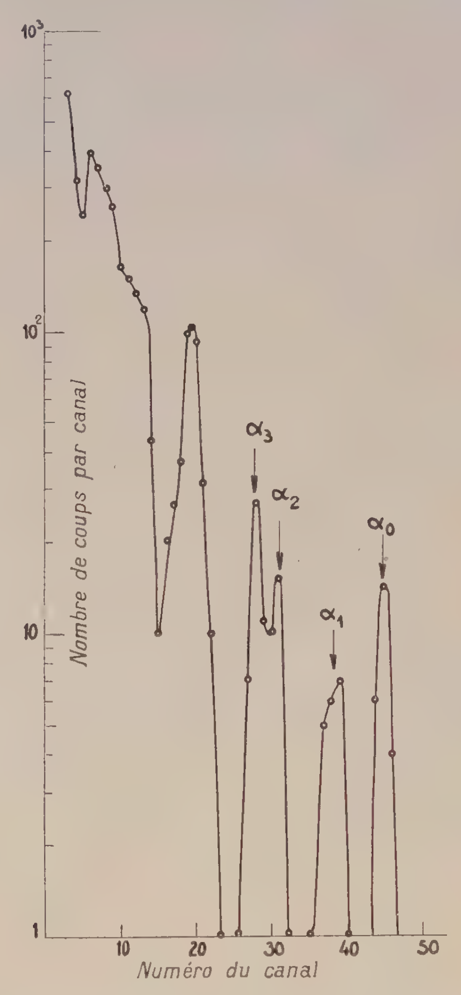


Fig. 5. — Spectre des particules chargées provenant de la réaction de ^{6}Li sur ^{9}Be, observé à 120°. Les pics d'alpha indiqués sur la figure proviennent de la réaction

$$^6\text{Li} + {}^9\text{Be} = \alpha + {}^{11}\text{B}.$$

courant : un préamplificateur gain 25 légèrement modifié, suivi d'un amplificateur proportionnel 2 Mc type C. E. A. La jonction était placée à 5 cm de la cible et son fonctionnement sous vide pendant un mois ne l'a pas détériorée. La position du préamplificateur à l'extérieur de la chambre à diffusion et la géométrie de cette dernière nous ont imposé une liaison capacitive de 10 à 20 pF ; d'où une perte de résolution du détecteur que nous

pensons éviter au cours des prochaines expériences en utilisant un préampli de charge.

Avec une source naturelle d'alpha (Th *C'*) et pour une tension de 45 V appliquée à la jonction, nous avons obtenu des raies dont la largeur à mi-hauteur (Γ), indépendante de l'énergie des particules détectées dans le cas d'une jonction, est de 135 keV, en connectant directement la jonction au préamplificateur. Dans les conditions de nos expériences : $\Gamma = 300$ keV. Cette résolution a été obtenue sans aucune précaution spéciale. Elle est très loin des conditions optimum des jonctions, mais elle a été suffisante pour nos mesures.

Sur la figure 5, qui représente le spectre des particules chargées observé à 120°, il est possible de séparer les pics α_3 et α_2 auxquels correspondent des énergies différant de 380 keV ; pour α_0 le Γ mesuré est de 340 keV, les raies pouvant d'ailleurs présenter un élargissement supplémentaire dû à la variation relativement rapide de l'énergie des particules détectées en fonction de l'angle. Avec le cristal de CsI que nous possédions, la meilleure résolution obtenue était de l'ordre de 20 %.

Résultats expérimentaux. — Les raies marquées α_0, α_1, α_2, α_3 ont été identifiées et correspondent à l'état fondamental et aux trois premiers états excités de ^{11}B. La réaction qui produit les alpha est la suivante :

$$^{6}\text{Li} + {}^{9}\text{Be} = {}^{4}\text{He} + {}^{11}\text{B}.$$

Ces quatre groupes d'alpha ont déjà été trouvés et étudiés par Leigh et Blair [3] dont nous avons vérifié les résultats.

Dans la région de basse énergie, plusieurs raies plus intenses, dont l'identification n'est pas encore définitive, apparaissent.

V. **Interprétation des résultats.** — Parmi les résultats obtenus, il semble intéressant de souligner ceux qui concernent la production intense de ^{7}Li et de ^{10}B et le rapport constant des sections efficaces de formation des premiers états excités de ^{7}Li et de ^{10}B en fonction de l'énergie du ^{6}Li incident. Ces données expérimentales nous conduisent à deux hypothèses : le ^{7}Li et le ^{10}B proviennent, soit de la désintégration d'un seul état excité de ^{11}B, soit de la désintégration des niveaux différents de ^{11}B dont les rapports de désintégration doivent être identiques. Nous pouvons supposer, d'accord avec ces hypothèses, que la réaction primaire se produit par stripping du deutéron de ^{6}Li, ce dernier étant alors constitué d'un deutéron et d'un alpha. Dans ce cas, la réaction qui se produit est :

$$^{6}\text{Li} + {}^{9}\text{Be} = \alpha + {}^{11}\text{B}.$$

Le ^{4}He emporte une énergie de 1 à 2 MeV. Le ^{11}B est formé dans un état très excité et se désintègre en $\alpha + {}^{6}$Li ou $n + {}^{10}$B. L'énergie disponible dans notre réaction étant de 14,35 MeV, nous pouvons atteindre les niveaux de ^{11}B de 13,16 MeV, 14,0 MeV et 15,1 MeV. Ces trois niveaux se désexcitent par émission de α et n [4].

Dans notre première communication [2], nous avions envisagé la possibilité de l'existence des réactions de transfert d'un seul nucléon ; nous poursuivons nos expériences afin d'obtenir des résultats complémentaires qui préciseront la contribution relative des deux mécanismes suggérés.

Nous remercions M. le Pr Chastel pour la collaboration apportée par le Laboratoire de Physique Nucléaire de Bordeaux, MM. A. Claes et J. Petres pour la conduite du Van de Graff, M. J. Quidort pour la mise en route du détecteur à jonction, Mme Bouraoui et Mlle Garrabos pour le dépouillement des plaques.

Nous remercions particulièrement M. E. Cotton qui nous a encouragés au cours de nos expériences.

Manuscrit reçu le 23 février 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Allison (S. K.) et Littlejohn (C. S.), *Phys. Rev.*, 1956, **104**, 959.
[2] Marquez (L.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 355.
[3] Leigh (J. J.) et Blair (J. M.), *Phys. Rev.*, 1961, **121**, 246.
[4] Ajzenberg-Selove (F.) et Lauritsen (T.), *Nuclear Physics*, 1959, **11**, 94.

INFLUENCE DE LA TEMPÉRATURE SUR LE SPECTRE RAMAN DE LA GLYCÉRINE

Par ROBERT EBENSTEIN et MONIQUE HARRAND,
Laboratoire des Recherches Physiques, Sorbonne, Paris.

Résumé. — Les auteurs ont étudié l'influence de la température sur le spectre Raman de la glycérine. Ils n'ont pas décelé de variation de fréquences quand la température passait de 25° à 170 °C, mais ils ont observé une diminution de largeur des deux bandes à 1 465 cm^{-1} et à 1 066-1 105 cm^{-1} (respectivement 26 % et 6 %), cette diminution résultant de la dépolymérisation.

Abstract. — The authors have studied the influence of temperature on the Raman spectrum of glycerin. They have not seen any shift of frequencies when the temperature is increased from 25° to 170 °C, but they have observed a decreasing width of the two bands at 1 465 cm^{-1} and at 1 066-1 105 cm^{-1} (respectively 26 % and 6 %) ; this decrease is a result of depolymerization.

Pour obtenir un spectre Raman convenable de la glycérine il est nécessaire d'éliminer le fond continu de fluorescence qui se superpose aux raies Raman. Cette fluorescence est due pour une part aux impuretés et pour une autre part à la décomposition de la glycérine sous l'effet des radiations ultra-violettes et violettes.

Nous avons excité la glycérine par la radiation 4 358 Å du mercure et nous avons éliminé les radiations de plus courte longueur d'ondes en utilisant un double filtre formé d'une solution aqueuse saturée de NO_2Na et d'un verre Schott GG2. Lors de l'irradiation à température élevée, il a été nécessaire de renouveler la glycérine au cours d'une pose à cause de l'altération produite par le chauffage et par la décomposition photochimique.

Nous avons utilisé la glycérine bi-distillée pour analyse livrée par plusieurs laboratoires. Le produit Prolabo, de densité 1,26 contient jusqu'à 3 % d'eau en masse ; la glycérine étant hygroscopique, cette teneur représente un minimum ; pour éviter la fixation de vapeur d'eau atmosphérique, les remplissages des cuves Raman ont été effectués en atmosphère anhydre, dans une enceinte constituée par un sac plastique transparent contenant de l'actigel. La glycérine Merck est d'une plus grande pureté, mais sa densité est 1,23 car elle contient jusqu'à 12 % d'eau. Un tel pourcentage était inacceptable car nous désirions obtenir le spectre de la glycérine et non celui d'un mélange ; d'autre part, lors des poses à chaud, l'eau en solution est libérée et forme des bulles qui perturbent l'image spectrale. Nous avons procédé à une deshydratation par chauffage modéré sous pression réduite : la température restant inférieure à 100 °C, la pression était abaissée à 12 mm de mercure. La teneur en eau a été ainsi ramenée à 4,25 %.

Les spectres ont été réalisés avec un montage Raman transversal ; la cuve était éclairée par deux arcs à vapeur de mercure. Le spectrographe comporte deux prismes, il est ouvert à F/4,5 ; dans la région spectrale utilisée, la dispersion est de 28 Å/mm ; la largeur de la fente d'entrée était réglée à 0,1 mm.

Nous avons effectué des poses à des températures comprises entre 20 °C et 200 °C. La cuve Raman étant disposée dans un four parallélépipédique étroit percé de trois fenêtres et placé entre les condenseurs. Un système de réglage par thermomètre à contact et relais permettait de maintenir la température à la valeur désirée. Pour éviter que les vapeurs libérées lors du chauffage ne se condensent sur les surfaces optiques, nous avons relié la cuve Raman à un tube manométrique contenant, lui aussi, de la glycérine.

Les raies Raman de la glycérine sont assez larges et pour les spectres obtenus à température élevée le contraste diminue du fait de l'augmentation du fond continu de fluorescence. Pour cette raison les mesures de fréquences ont été faites sur les enregistrements microphotométriques, par interpolation linéaire entre deux raies du fer. Nous avons évalué à 5 cm^{-1} la limite supérieure d'une détermination de fréquence. Nous avons pris la moyenne de plusieurs mesures et pour chaque raie nous avons calculé l'écart moyen qui est, sauf dans un cas, nettement inférieur à 5 cm^{-1}.

Influence de la température sur les fréquences. — Les molécules de glycérine, qui comportent trois groupements OH, sont associées par des liaisons hydrogène. Pour connaître l'effet de la polymérisation sur le spectre Raman, il est nécessaire de trouver des conditions expérimentales pour lesquelles le degré d'association est inférieur. Dans ce but Saxena [1] a étudié les spectres des mélanges eau-glycérine. La diminution de la viscosité prouve l'abaissement du degré d'association, mais le choix d'un solvant polaire est critiquable. La seule modification de fréquence observée par Saxena concerne la raie 674 cm^{-1} : la dilution s'accompagnerait d'une élévation de fréquence de 15 cm^{-1}. Sundara

Rao [2] a confirmé ce changement et l'a obtenu en provoquant la dépolymérisation par élévation de la température de 30 °C à 100 °C.

Par comparaison des spectres obtenus à la température ambiante et à haute température, nous n'avons décelé aucune variation de fréquence consécutive à l'élévation de température.

Le tableau suivant donne la valeur moyenne des fréquences pour les deux domaines de température avec l'écart moyen correspondant. Pour qu'une variation de fréquence soit certaine, il faudrait qu'elle ait une amplitude supérieure au double de l'erreur commise sur une mesure (5 cm⁻¹), ce qui n'est pas le cas, en particulier pour la raie de fréquence 671 cm⁻¹.

$\nu_{25°}$	Écart moyen	$\nu_{150-165°}$	Écart moyen	$\nu_{150-165°}$
—	—	—	—	—
324,4	3,7	324,2	3,2	— 0,2
413,6	2,6	412,5	3,6	— 1,1
486,6	2,7	485,8	2,0	— 0,8
550,0	2,3	545,7	4,2	— 4,3
671,0	3,7	671,2	3,9	+ 0,2
822,5	1,6	818,5	3,8	— 4,0
848,4	2,9	849,2	3,1	+ 0,8
918,0	4,3	919,8	2,3	+ 1,8
977,4	2,3	979,3	7,4	+ 1,9
1 065,8	1,4	1 062,4	2,8	— 3,4
1 087,2	2,4	1 087,0	0,8	— 0,2
1 105,8	3,6	1 106,1	4,1	+ 0,3
1 260,3	3,7	1 260,0	—	— 0,3
1 464,9	1,8	1 465,8	2,4	+ 0,9

S'il y a variation des fréquences Raman avec la température, celle-ci est trop faible pour être décelée dans nos mesures et n'est certainement pas de 15 cm⁻¹.

Influence de la température sur la largeur des raies. — Les raies Raman de la glycérine sont larges et floues. Les molécules étant lourdes et associées par des liaisons, on ne peut attribuer la largeur des raies aux rotations, mais les liaisons hydrogène qui unissent entre elles les molécules, perturbent les vibrations des liaisons voisines et élargissent les raies correspondantes.

Un des effets de la dépolymérisation devrait être dans ces conditions d'accroître la finesse des raies ; pour étudier ce phénomène, nous avons mesuré sur les enregistrements les largeurs à mi-hauteur des pics présentant un profil simple aussi bien à température ordinaire qu'à température élevée. Nous avons observé, dans un cas au moins, une nette diminution de largeur consécutive à l'élévation de température.

Nous avons d'abord vérifié que dans le domaine des faibles densités utilisées, la largeur d'une raie ne dépendait pas de sa densité photographique. En effet pour chaque température nous avons été amené à chercher les meilleurs conditions expérimentales, donc à varier les temps de pose ; d'autre part à cause de la fluorescence, les contrastes sont variables d'une plaque à l'autre. Nous avons évalué la densité photographique relative de la raie de fréquence 1 465 cm⁻¹ par rapport au fond continu de fluorescence. Pour sept densités croissant de 0,08 à 0,28, nous obtenions les largeurs respectives suivantes (à 25 °C) : 9,5 — 9,5 — 11,0 — 9,5 — 9,0 — 9,5 — 10,0 mm.

Dans ces conditions il nous était possible de comparer les largeurs de raies obtenues à différentes températures.

La précision sur la détermination des largeurs à mi-hauteur est médiocre, au point d'enlever toute valeur aux résultats, si les raies ont un profil complexe et changeant : cette complexité et cette instabilité proviennent souvent du grain de la plaque, mais il est possible que l'élévation de température s'accompagne d'une variation de structure des raies comme si la dépolymérisation libérait des composantes nouvelles. Pour ces raisons, les mesures de largeur n'ont été faites que pour la raie de fréquence 1 465 cm⁻¹ et la bande 1 066-1 106 cm⁻¹ qui s'inscrivent de façon satisfaisante aussi bien à température ordinaire qu'à température élevée.

Influence de la température sur la largeur de la raie a 1 465 cm⁻¹. — Largeur obtenue pour divers clichés à 25 °C : 31,0 — 31,0 — 31,0 — 32,6 — 31,0 — 29,4 — 35,9 cm⁻¹.

Valeur moyenne : 31,7 cm⁻¹ ; moyenne des écarts par rapport à cette valeur : 1,5 cm⁻¹.

A température élevée les résultats sont les suivants :

Température : 140 — 150 — 155 — 155 — 160 — 170 °C.

Largeur : 19,6 — 24,8 — 23,8 — 26,4 — 24,5 — 21,2 cm⁻¹.

Valeur moyenne : 23,4 cm⁻¹ ; moyenne des écarts par rapport à cette valeur : 2,0 cm⁻¹.

La diminution de largeur est de 8 cm⁻¹ alors que la valeur moyenne des écarts est de 2 cm⁻¹.

Influence de la température sur la largeur de la bande a 1 066-1 106 cm⁻¹. — Largeur obtenue pour divers clichés pris à 25 °C : 99,2 — 97,8 — 89,2 — 103,2 — 111,6 — 105,1 — 102,6 — 107,1 cm⁻¹.

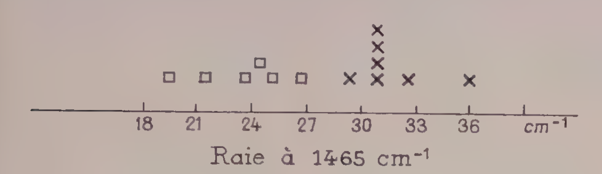
Valeur moyenne : 102,0 cm⁻¹ ; moyenne des écarts par rapport à cette valeur : 3,8 cm⁻¹.

A température élevée les résultats sont les suivants :

Température : 140 — 150 — 155 — 155 — 160 — 160 — 160 — 165 °C.

Largeur : 102,6 — 102,6 — 99,2 — 95,2 — 92,6 — 92,6 — 85,9 — 97,2 cm^{-1}.

Valeur moyenne : 96,0 cm^{-1} ; moyenne des écarts par rapport à cette valeur : 4,4 cm^{-1}.



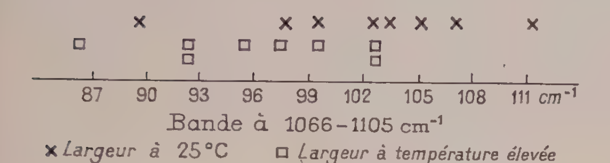


Fig. 1.

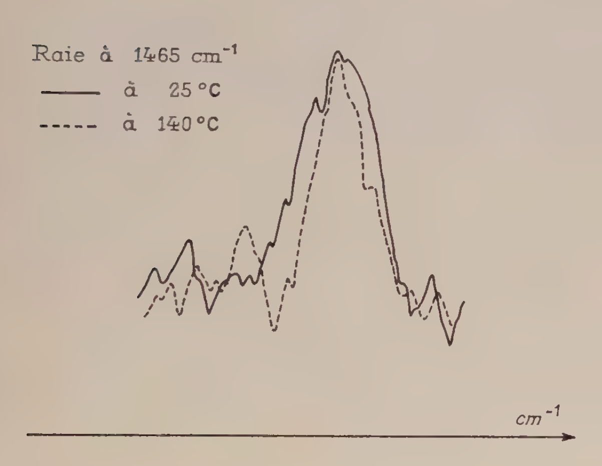


Fig. 2.

La diminution de largeur est de 6 cm^{-1}, mais ce résultat est entaché d'une grande incertitude car cette diminution n'atteint pas le double de l'écart moyen adopté comme valeur indicative de l'erreur sur les mesures de largeur.

La figure 1 rassemble les résultats précédents et montre la répartition des nombres obtenus pour les largeurs de ces deux bandes en fonction de la température. On constate que pour la raie à 1 465 cm^{-1} il y a deux groupes de valeurs nettement séparés.

La figure 2 est obtenue par superposition de deux enregistrements microphotométriques de la raie à 1 465 cm^{-1} dans les deux domaines de température envisagés. La diminution de largeur, symétrique, est bien visible.

Conclusion. — La raie Raman à 1 465 cm^{-1} est due à la déformation plane de l'angle des liaisons C-H. Comme les liaisons hydrogène sont variables d'une molécule à l'autre et même aux deux bouts de la molécule, elles ont pour effet soit d'augmenter, soit de diminuer l'angle d'où une variation de la fréquence correspondante de la vibration, de part et d'autre de la valeur que donnerait le groupement CH_2 isolé. Il en résulte un élargissement à peu près symétrique.

Quand la glycérine est chauffée, les liaisons hydrogène sont détruites, au moins en partie, comme le prouve la diminution de viscosité et l'on doit se rapprocher alors de l'état vibratoire du radical non perturbé : la raie devient plus fine, ainsi que nous l'avons trouvé pour la raie à 1 465 cm^{-1}.

Le phénomène devrait être le même à l'autre bout de la liaison hydrogène, c'est-à-dire pour les raies de déformation de l'angle COH. Or la bande 1 066-1 106 cm^{-1} est attribuée à la déformation plane de cet angle, mais cette bande est très large par suite de l'existence de deux sortes de fonction alcool dans la molécule. L'action de l'hydrogène sur l'oxygène est certainement plus faible que l'action inverse ce qui laisse prévoir une faible diminution de largeur par dépolymérisation. Nos mesures semblent confirmer ce résultat.

A la température de 150 °C on obtient donc déjà une dépolymérisation importante de la glycérine.

Manuscrit reçu le 1er septembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Saxena, *Proc. Indian Acad. Sc.*, 1939, A **10**, 333.

[2] Sundara Rao, *Indian J. Phys.*, 1941, **14**, 365-367.

SUR LES INTERFÉRENCES DE DEUX IMPURETÉS MÉTALLIQUES

Par B. CAROLI,
Physique des Solides, Faculté des Sciences, Orsay (Seine-et-Oise).

Résumé. — On étudie comment les densités électroniques d'un métal sont perturbées par la présence de deux impuretés. Sur un modèle schématique, électrons libres à une dimension diffusés par deux puits de potentiel δ, on analyse les oscillations de charge produites autour de deux impuretés. On montre qu'elles comprennent des termes d'interférences, en plus des oscillations de charge produites par chacun des puits pris séparément. Ces termes correctifs sont d'un ordre supérieur en perturbation aux oscillations produites par deux puits isolés.

Abstract. — The perturbations in the electronic density of a metal by two impurity atoms are studied. On a schematic model using one dimensional free electrons scattered by two δ potential wells, the charge oscillations produced by the two impurities are analyzed. They are shown to be the sum of the charge oscillations due to each of the wells scattering independently, plus interferences terms. These corrective terms are of higher order in perturbation than the oscillations due to independent wells.

1. **Introduction.** — La diffusion des électrons métalliques par des atomes d'impureté pris isolément est assez bien comprise [1]. L'atome d'impureté perturbe localement la structure électronique et s'entoure de régions concentriques alternativement d'excès et de défaut de charge électronique [2]. Les oscillations de charge ont des longueurs d'onde comparables à celles des électrons au niveau de Fermi et des amplitudes reliées au pouvoir diffusant des impuretés et décroissant avec la distance à l'impureté. Elles permettent, en particulier, d'interpréter de façon satisfaisante l'action des impuretés sur la résonance magnétique des noyaux de la matrice, par un calcul qui donne également une résistivité résiduelle convenable pour les impuretés [3].

Les interactions entre atomes d'impuretés dissoutes dans les métaux sont beaucoup moins bien comprises. On sait que, dans l'approximation de Born, la résistivité résiduelle doit varier de façon parabolique avec la concentration [4] mais on ignore l'importance des termes d'ordre supérieur. L'énergie de liaison et la résistivité résiduelle d'une bilacune ont été estimées de façon approchée [5]. Mais en général les estimations d'énergie chimique d'interaction de deux atomes d'impureté, faites dans le modèle de Thomas-Fermi, négligent les oscillations de charge à grande distances qui jouent probablement un rôle prépondérant ; elles n'ont donc sans doute aucune valeur [6]. Dans l'interprétation des couplages magnétiques, où les oscillations de charge interviennent [7], on a supposé que les oscillations d'impuretés voisines superposent leurs densités de charge sans les modifier.

L'analyse des interactions de deux atomes d'impureté dissouts dans un métal présente donc un intérêt assez général. Dans cette étude préliminaire, nous avons simplifié le problème au maximum, en considérant un gaz d'électrons libres à une dimension, diffusé par deux puits de potentiels δ identiques et de faible amplitude. Après avoir déterminé les fonctions d'ondes et la densité d'états perturbés (paragraphe 2), nous étudions comment les densités électroniques varient avec la distance entre les puits en considérant la région entre les impuretés puis à l'extérieur (paragraphes 3 et 4).

2. **Détermination des fonctions d'onde et de la densité d'états.** — Nous considérons un gaz d'électrons à une dimension diffusés par deux puits carrés

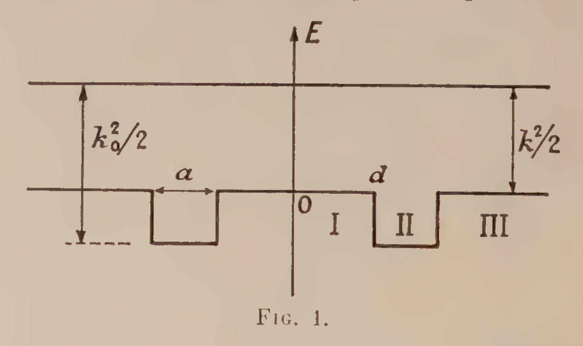


FIG. 1.

de potentiel, de profondeur V_0 et de largeur a (*fig.* 1).

2.1. DÉTERMINATION DES FONCTIONS D'ONDE. — En prenant l'origine des abscisses au milieu entre les deux puits, les fonctions d'onde d'énergie $E = k^2/2$ s'écrivent :

$$\psi_1^{AS}(x) = 2a_{AS} \sin kx.$$

$$\psi_2^{AS}(x) = 2a_{AS}$$

$$[(k/k_0) \cos kd \sin k_0(x - d) + \sin kd \cos k_0(x - d)]$$

$$\psi_3^{AS}(x) = 2a_{AS}$$
$$[(k/k_0)\cos kd \sin k_0 a + \sin kd \cos k_0 a]\frac{\sin k(x-L)}{\sin k(a+d-L)}$$
$$\operatorname{tg} k(a+d-L)|_{AS} = (k/k_0)\frac{k \operatorname{tg} k_0 a + k_0 \operatorname{tg} kd}{k - k_0 \operatorname{tg} kd \operatorname{tg} k_0 a} \quad (2.1.1)$$

et

$$\psi_1^S(x) = 2a_S \cos kx.$$
$$\psi_2^S(x) = 2a_S$$
$$[\cos kd \cos k_0(x-d) - (k/k_0)\sin kd \sin k_0(x-d)]$$
$$\psi_3^S(x) = 2a_S$$
$$[\cos kd \cos k_0 a - (k/k_0)\sin kd \sin k_0 a]\frac{\sin k(x-L)}{\sin k(a+d-L)}$$
$$\operatorname{tg} k(a+d-L)|_S = -(k/k_0)\frac{k_0 - k \operatorname{tg} kd \operatorname{tg} k_0 a}{k_0 \operatorname{tg} k_0 a + k \operatorname{tg} kd}. \quad (2.1.2)$$

Les indices S et AS se rapportent respectivement aux fonctions symétriques et antisymétriques, les indices 1, 2, 3, aux trois régions I, II, III, définies (*fig.* 1), a_S et a_{AS} sont des coefficients de normalisation, L est une limite arbitraire où les fonctions d'onde s'annulent.

2.2. Détermination de la densité d'états. Théorème de von Laue. — Introduisons un déphasage $\delta(k)$ défini par :

$$k_m L = m\pi - \delta(k).$$

La densité électronique, avec deux électrons par état k s'écrit :

$$n(k) = \frac{2}{k_{m+1} - k_m} = \frac{2}{\pi}\left(L + \frac{d\delta}{dk}\right). \quad (2.2.1)$$

La quantité $d\delta/dk$ se calcule à l'aide des formules (2.1.1) et (2.1.2) suivant que l'on considère le cas AS ou S, en posant :

$$\operatorname{tg} k(a+d-L)_i = (k/k_0)\,(N_i(k)/D_i(k)) \quad i = \text{S ou AS}$$

et en tenant compte de la relation de définition de $\delta(k)$, il vient alors

$$n_i(k) = (2/\pi)\,(1/|A_i|^2) \quad (2.2.2)$$

où A_i est l'amplitude des fonctions $\psi_3^i(x)$ et se met sous la forme

$$|A_i|^2 = 4a_i^2 \frac{k_0^2 D_i^2(k) + k^2 N_i^2(k)}{k_0^2(1+\operatorname{tg}^2 kd)(1+\operatorname{tg}^2 k_0 a)}. \quad (2.2.3)$$

Lorsque L tend vers l'infini, la densité électronique à grande distance des impuretés est en moyenne $(1/2)\,n_i|A_i|^2 = (2/\pi)$. Elle est donc la même qu'en l'absence de perturbations : on retrouve le théorème de von Laue [8] dans le cas particulier présent.

3. **Modification de la densité électronique pour deux puits δ.** — Nous simplifions les formules en considérant désormais des puits δ :

$$\lim_{\substack{k_0\to\infty \\ a\to 0}} k_0^2\, a = \gamma = \text{Cte}.$$

La formule (2.2.2), compte tenu de (2.2.3), devient :

$$n_{AS}(k) = \frac{1}{2\pi a_{AS}^2}\left[1 - \frac{\gamma}{k}.\sin 2kd + \frac{\gamma^2}{k^2}.\sin^2 kd\right]^{-1}$$
$$n_S(k) = \frac{1}{2\pi a_S^2}\left[1 + \frac{\gamma}{k}.\sin 2kd + \frac{\gamma^2}{k^2}.\cos^2 kd\right]^{-1}.$$

L'introduction des puits perturbateurs doit changer localement la densité électronique.

3.1. Étude entre les puits. — La variation de densité électronique par rapport au gaz non perturbé s'écrit :

$$\Delta_1 \rho(x) = \frac{2}{\pi}\int_0^{k_M} \frac{2\gamma^2 k^2 - [2\gamma k \cos 2kd - \gamma^2 \sin 2kd]^2 - [4\gamma k^3 \sin 2kd + 2\gamma^2 k^2 \cos 2kd]\cos 2kx}{4k^4 + [2\gamma k \cos 2kd - \gamma^2 \sin 2kd]^2}\,dk. \quad (3.1.1)$$

où k_M est le vecteur d'onde du niveau de Fermi. Cette formule contient des termes d'addition simple des effets des deux puits sans interaction situés l'un à $x = +d$ l'autre à $x = -d$ et les termes d'interférence. Ceux-ci sont alors donnés par :

$$\Delta_1 \rho_{int.}(x) = \Delta_1 \rho(x) - [\Delta_1 \rho_0(x+d) + \Delta_1 \rho_0(x-d)].$$

où $\Delta\rho_0(x)$ est la contribution d'un puits isolé à l'origine. $\Delta\rho_0(x)$ s'obtient évidemment à partir de $\Delta\rho(x)$ pour $d = 0$ et en divisant γ par deux.

En posant :

$$E(k) = 4k^4 + [2\gamma k \cos 2kd - \gamma^2 \sin 2kd]^2$$

il vient :

$$\Delta_1 \rho_{int.}(x) \quad (3.1.2)$$
$$= \frac{2}{\pi}\gamma^2 \int_0^{k_M} [2k^2 - (2k\cos 2kd - \gamma \sin 2kd)^2]\frac{dk}{E(k)}$$
$$- \frac{4}{\pi}\gamma^3 \int_0^{k_M} [k^2 - (2k\cos 2kd - \gamma\sin 2kd)^2]$$
$$(\sin 2k(x+d) - \sin 2k(x-d))\frac{dk}{(4k^2+\gamma^2)E(k)}$$
$$- \frac{2}{\pi}\gamma^4 \int_0^{k_M} [k^2 - (2k\cos 2kd - \gamma\sin 2kd)^2]$$
$$(\cos 2k(x+d) + \cos 2k(x-d))\frac{dk}{(4k^2+\gamma^2)E(k)}.$$

3.2. Étude a l'extérieur des puits. — Les fonctions d'onde s'écrivent :

$$\psi_3^{AS} = A_{AS}(k) \sin (kx + \delta_{AS}) \qquad \delta_{AS} = n\pi - kL$$

$$\psi_3^{S} = A_{S}(k) \cos (kx + \delta_{S}) \qquad \delta_{S} = n\pi - \frac{\pi}{2} - kL.$$

δ_S et δ_{AS} sont liés à la présence des impuretés par les relations (2.1.1) et (2.1.2) :

$$\mathrm{tg}(kd + \delta_{AS}) = \frac{1}{1 - (\gamma/k)\,\mathrm{tg}\, kd}$$

et $$\mathrm{tg}(kd + \delta_{S}) = (\gamma/k) + \mathrm{tg}\, kd.$$

Un calcul analogue à celui du paragraphe (3.1) donne pour les termes d'interférence :

$$\Delta_3\, \rho_{\text{int.}}(x) = -\frac{4}{\pi}\gamma^2 \int_0^{k_M} \frac{k^2}{E(k)} \cos 2k(x+d)\, dk$$
$$-\frac{4}{\pi}\gamma^3 \int_0^{k_M} [k^2 - (2k\cos 2kd - \gamma \sin 2kd)^2]\, k$$
$$(\sin 2k(x+d) + \sin 2k(x-d)) \frac{dk}{(4k^2+\gamma^2)(Ek)}$$
$$+\frac{\gamma^3}{\pi}\int_0^{k_M} (3 \sin 2k(x+d) - 2\sin 2k(x-d)$$
$$-\sin 2k(x-3d)) \frac{k\, dk}{E(k)}$$
$$-\frac{2}{\pi}\gamma^4 \int_0^{k_M} [k^2 - (2k\cos 2kd - \gamma\sin 2kd)^2]$$
$$(\cos 2k(x+d) + \cos 2k(x-d)) \frac{dk}{(4k^2+\gamma^2)\,E(k)}$$
$$-\frac{\gamma^4}{\pi}\int_0^{k_M} \left(\cos 2k(x-d) - \frac{1}{2}\cos 2k(x+d) - \frac{1}{2}\cos 2k(x-3d)\right)\frac{dk}{E(k)}.$$

Cette formule et (3.1.2) sont exactes pour des puits δ.

4. Cas des faibles perturbations.

— Nous nous contenterons ici d'évaluer le premier ordre significatif pour de petites perturbations γ.

$$\Delta_1\, \rho_{\text{int.}} = -\frac{\gamma^2}{\pi}\int_0^{k_M} \frac{\cos 4kd}{k^2 + (\gamma^2/2)}\, dk + 0_3(\gamma)$$
$$= -\frac{\gamma^2}{2} e^{-2\sqrt{2}\gamma d} - \frac{4\gamma^2 d}{\pi}\left(\frac{\pi}{2} - \mathrm{Sin}\, 4k_M d\right)$$
$$+\frac{\gamma^2}{\pi}\frac{\cos 4k_M d}{k_M}$$

$$\Delta_3\, \rho_{\text{int.}}(x) = -\frac{\gamma^2}{\pi}\int_0^{k_M}\frac{\cos 2k(x+d)}{k^2+\gamma^2/2)}\, dk + 0_3(\gamma)$$
$$= -\frac{\gamma^2}{2} e^{-\sqrt{2}\gamma(x+d)} - \frac{2\gamma^2}{\pi}(x+d)\left(\frac{\pi}{2} - \mathrm{Sin}\, 2k_M(x+d)\right)$$
$$+\frac{\gamma^2}{\pi}\frac{\cos 2k_M' x + d)}{k_M}.$$

Alors que pour un puits isolé, les deux premiers termes significatifs sont :

$$\Delta\rho_0(x) = -\frac{\gamma}{\pi}\int_0^{k_M}\frac{k \sin 2kx}{k^2+\gamma^2/4}\, dk$$
$$-\frac{\gamma^2}{2\pi}\int_0^{k_M}\frac{\cos 2kx}{k^2+(\gamma^2/4)}\, dk$$
$$= -\frac{\gamma}{2}e^{-\gamma x} + \frac{\gamma}{\pi}\left[\frac{\pi}{2} - \mathrm{Sin}\, 2k_M x\right]$$
$$-\frac{\gamma^2}{4}e^{-\gamma x}$$
$$+\frac{\gamma^2}{2\pi}\left[\frac{\cos 2k_M x}{k_M} + 2x\left(\mathrm{Sin}\, 2k_M x - \frac{\pi}{2}\right)\right].$$

Sin x est mis pour sinus intégral de x. Une intégration par partie donne :

$$\Delta_3\, \rho_{\text{int.}}(x) \underset{x \gg d}{\sim} -\frac{\gamma^2}{2\pi k_M^2}\frac{\sin 2k_M x}{x}$$

et

$$\Delta\rho_0(x) \sim +\frac{\gamma}{2\pi}\frac{\cos 2k_M x}{k_M x} - \frac{\gamma^2}{4\pi}\frac{\sin 2k_M x}{k_M^2 x}.$$

si $x \to \infty$.

5. Conclusion.

— Dans le modèle très théorique étudié, les variations de densité électroniques, dues aux interférences entre impuretés, ont donc les propriétés suivantes : 1. Elles sont d'un ordre supérieur aux variations de densité des puits isolés. 2. Au premier ordre significatif, elles sont constantes entre les deux puits et décroissent à grande distance comme une fonction oscillante de $2k_M x$ sur la distance x.

On peut donc s'attendre, dans les alliages de concentration finie, à des couplages non nuls par interférence. Les résultats à trois dimension doivent cependant être un peu différents : Ceux-ci ne seraient plus constants entre les deux puits.

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à M. le Pr J. Friedel, qui m'a inspiré ce travail et m'a guidé tout au long de sa réalisation.

Manuscrit reçu le 15 février.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Mott (N. F.) et Jones (H.), Metals and Alloys, Oxford, 1936. Friedel (J.), *Adv. in Physics*, 1954, **3**, 446. Roth (L.), *Thèse*, Harvard University, 1957.
[2] Daniel (E.), *J. Physique Rad.*, 1959, **10**, 769. Blandin (A.), *Ann. Physique* (à paraître). Leman (G.), *J. Phys. Chem. Solids*, 1960, **13**, 221.
[3] Cf. [2] aussi. Kohn (W.) et Vosco (S. H.), *Phys. Rev.*, 1960, **119**, 912. Daniel (E.), *J. Phys. Chem. Solids*, 1958, **6**, 205. Blatt (F. J.), *Phys. Rev.*, 1957, **108**, 285.
[4] Nordheim (cf. Mott et Jones).
[5] Seeger (A.) et Stehle (H.), *Z. Physik*, 1956, **146**, 242.
[6] Friedel (J.), *Nuovo Cimento*, cf. Lazarus.
[7] Ruderman (M. A.) et Kittel (C.), *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 99. Yoshida (K.), *Phys. Rev.*, 1957, **106**, 893. Blandin (A.) et Friedel (J.), *J. Physique Rad.*, 1959, **20**, 160. De Gennes (P. G.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **247**, 1836.
[8] Von Laue, *Ann. Physik*, 1914, **44**, 1197.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM TOME 22, JUIN 1961, PAGE 359.

LE FILTRAGE MATHÉMATIQUE DANS LA SPECTROSCOPIE PAR TRANSFORMATION DE FOURIER

Par J. CONNES (*) et V. NOZAL,
Laboratoire Aimé-Cotton, Bellevue.

Résumé. — On est conduit pour obtenir le rapport signal/bruit maximum dans le spectre calculé numériquement à partir d'un interférogramme à utiliser un nombre de points très supérieur au nombre d'éléments spectraux, d'où un temps de calcul très élevé. Dans la méthode du filtrage mathématique on calcule d'abord la convolution de l'interférogramme enregistré par la réponse percussionnelle du filtre idéal isolant les fréquences Fourier. Il suffit ensuite de faire la transformée de Fourier du nouvel interférogramme avec un nombre de points minimum d'où une réduction considérable du temps de calcul total.

Abstract. — In order to obtain the maximum signal to noise ratio when computing a spectrum from an interferogram, the number of points that have to be measured is much greater that the number of spectral elements; hence the computing time is excessive. With the method of " mathematical filtering " one first compute the convolution of the interferogram by the impulse response of an ideal filter isolating the wanted domain of Fourier frequencies. Then one computes the Fourier transform of the new interferogram with a smaller number of points ; the computing time is thus much reduced.

Une étude précédente de la méthode de spectroscopie par transformation de Fourier a montré dans quelles conditions le spectre pouvait être calculé en faisant la transformée de Fourier de l'interférogramme à partir de valeurs discrètes relevées sur cet interférogramme [1]. En l'absence de bruit, il suffit pour reconstituer le spectre de relever un nombre de points égal au nombre d'éléments spectraux à étudier. Mais on montre que pratiquement le spectre du bruit étant plus étendu que celui des fréquences de Fourier, pour obtenir un rapport signal/bruit dans le spectre calculé voisin du rapport signal/bruit maximum qu'on obtiendrait en calculant le spectre par une intégrale de Fourier, le nombre de points à utiliser est beaucoup plus grand. La durée et le prix de revient du calcul d'une transformée de Fourier étant proportionnels au nombre de points d'entrée sont augmentés d'autant. On a donc intérêt à limiter le spectre du bruit au domaine du spectre à étudier. Plusieurs méthodes d'enregistrement de l'interférogramme sont alors possibles pour obtenir ce résultat : emploi d'un filtre passe bande, méthode du changement de fréquence de Mertz [2]. Mais elles présentent toutes une certaine complication instrumentale. Par exemple, un filtre passe bande avec une bande passante centrée sur la valeur moyenne des fréquences à étudier est difficile à réaliser aux fréquences basses généralement utilisées.

La méthode de filtrage mathématique utilise l'interférogramme $I'(\delta)$ enregistré à travers un simple filtre passe bas. A partir de valeurs discrètes de $I'(\delta)$ on calcule un second interférogramme $I''(\delta)$ en effectuant la convolution de $I(\delta)$ par la réponse percussionnelle d'un filtre dont la bande passante coïncide avec le domaine des fréquences de Fourier à étudier. Il suffit de faire ensuite la transformée de Fourier de $I''(\delta)$ avec le nombre de points minimum pour obtenir dans le spectre un rapport signal/bruit maximum. Comme le temps de calcul du produit de composition est faible par rapport à celui de la transformée de Fourier, le temps de calcul est voisin du temps de calcul minimum.

(*) Adresse actuelle : Service de Calcul Numérique. Observatoire de Meudon.

I. Principe de la méthode.

— Considérons un interférogramme $I'(\delta)$ enregistré à travers un simple filtre passe-bas. C'est la superposition de l'interférogramme $I(\delta)$ qu'on aurait en l'absence de bruit et d'un bruit $x(\delta)$ (*fig.* 1). Le spectre correspondant $B'p(\sigma)$ obtenu par calcul de l'intégrale de Fourier donc avec le rapport s/b maximum compatible avec le temps d'enregistrement T de l'interférogramme, est composé du spectre optique à étudier $Bp(\sigma)$ limité au domaine $\Delta\sigma_0$ compris entre

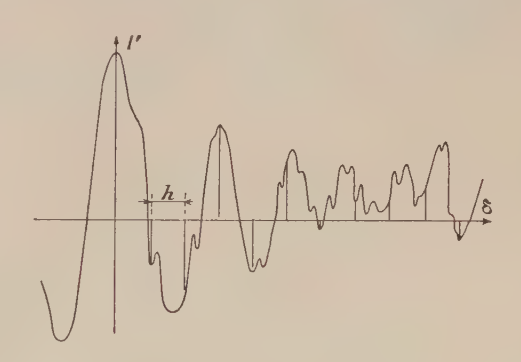


FIG. 1. — Interférogramme enregistré $I'(\delta)$.

σ_1 et σ_2 auquel se superpose un bruit $X(\sigma)$ (*fig.* 2). La figure 3 indique la position relative du spectre

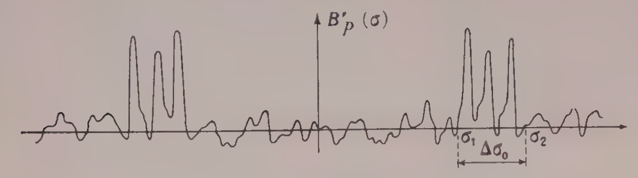


Fig. 2. — Spectre correspondant à $I'(\delta)$.

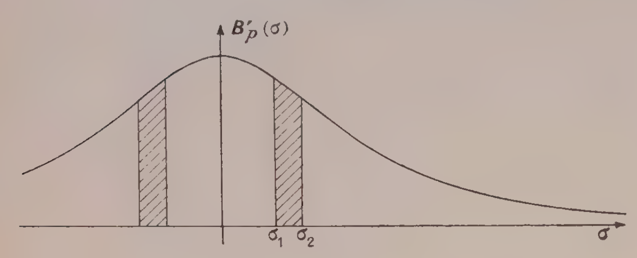


Fig. 3. — Position relative du spectre du bruit et du spectre optique.

optique $Bp(\sigma)$ et du spectre de puissance du bruit contenu dans $I'(\delta)$. Dans une transformée de Fourier numérique la fonction d'appareil est constituée d'une série de pics semblables distants de $1/h$ si h est la distance entre 2 points relevés sur l'interférogramme (*fig.* 1). Si on choisit h le plus grand possible pour reconstituer le spectre sans ambiguïté : $h = 1/2\Delta\sigma_0$ [1], un seul pic de la fonction d'appareil explore le spectre à étudier, mais plusieurs pics de la fonction d'appareil explorent le spectre du bruit, d'où une augmentation du bruit

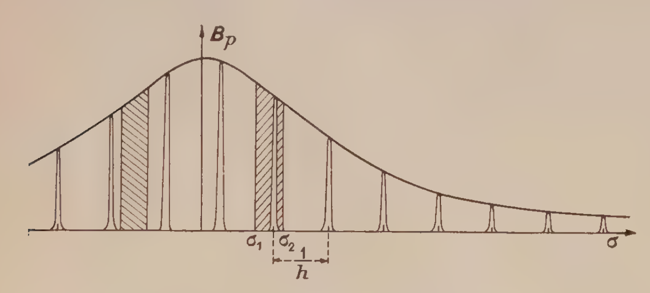


Fig. 4. — Fonction d'appareil explorant le spectre optique et le spectre du bruit.

dans le spectre calculé (*fig.* 4). Dans ce cas, avec apodisation [2], le nombre de points utilisés pour faire la transformée de Fourier est $n = 2M$, M étant le nombre d'éléments spectraux à étudier. Ce que nous nous proposons, c'est d'obtenir à partir de $I'(\delta)$ un interférogramme $I''(\delta)$ dont le spectre calculé par une intégrale de Fourier serait

$$B''p(\sigma) = B'p(\sigma) . G(\sigma) \quad (fig.\ 5) \qquad (1)$$

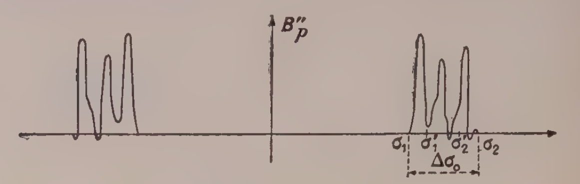


Fig. 5. — Transformée de Fourier de $I''(\delta)$.

$G(\sigma)$ étant une fonction créneau qui vaut 1 dans les domaines $\Delta\sigma_0$ symétriques par rapport à l'origine et est nulle ailleurs (*fig.* 6). Le bruit qu'il

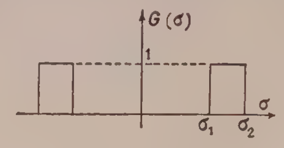


Fig. 6. — Filtre idéal.

contient est donc bien nul pour toutes les fréquences extérieures au domaine σ_1, σ_2. Si, momentanément, on ne s'intéresse qu'aux fréquences comprises entre σ_1 et σ_2, le gain du filtre qu'on choisira aura la forme représentée par la figure 7*a* et le

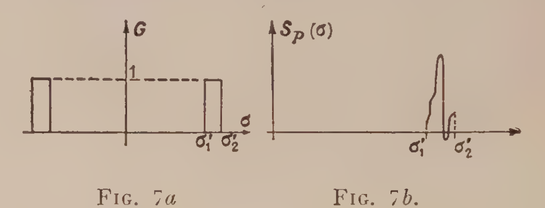


Fig. 7*a* Fig. 7*b*.

spectre $Sp(\sigma)$ sera nul en dehors des fréquences σ'_1, σ'_2 (*fig.* 7*b*).

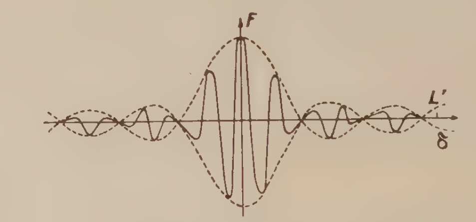


Fig. 8. — Réponse percussionnelle du filtre idéal.

Soit $F(\delta)$ la réponse percussionnelle du filtre dont la courbe de gain est $G(\sigma)$. C'est par définition la transformée de Fourier de $G(\sigma)$.

$$F(\delta) = \Delta\sigma \frac{\sin \pi\Delta\sigma\,\delta}{\pi\Delta\sigma\,\delta} \cos 2\pi\sigma_m\,\delta \qquad (2)$$

$\sigma_m = (\sigma_1 + \sigma_2)/2$ étant la fréquence moyenne du spectre à étudier (*fig.* 8).

[1] Pour choisir le pas h convenant à chaque cas, il faut tenir compte de la largeur du spectre optique et de sa position par rapport à l'origine. Si $\sigma_2 = k\Delta\sigma_0$, on a $h = 1/2\Delta\sigma_0$; dans les autres cas h est légèrement inférieur [1].

[2] La fonction d'appareil est une fonction en $\sin \alpha/\alpha$ qui présente des pieds qui peuvent être gênants. Pour l'apodiser il faut pondérer l'interférogramme par une fonction $A(\delta)$. Si c'est une fonction en triangle, pour obtenir la même résolution que sans apodisation, il faut employer un interférogramme 2 fois plus long et le nombre de points à relever est double.

De l'équation (1) on déduit immédiatement la relation intéressante entre $I''(\delta)$ et $I'(\delta)$.

$$I''(\delta) = I'(\delta)\,A(\delta) \ast F(\delta) \qquad (3)$$

$A(\delta)$ étant la fonction d'apodisation utilisée pour calculer $B'p(\sigma)$ à partir de $I'(\delta)$ (éventuellement égale à l'unité s il n'y a pas d'apodisation). Il suffit donc de faire la convolution de $I'(\delta)$ avec la réponse percussionnelle d'un filtre passe-bande centré sur le domaine à étudier pour obtenir un interférogramme dans lequel le spectre du bruit est nul en dehors des fréquences intéressantes.

Pratiquement pour calculer $I''(\delta)$ on utilise une réponse percussionnelle $F'(\delta)$ limitée à $\delta = L'$ soit

$$F'(\delta) = F(\delta)\,.\,D(\delta) \qquad (4)$$

$D(\delta)$ étant une fonction créneau valant 1 pour $|\delta| < L'$ et 0 ailleurs.

Les courbes de gain G' des filtres pratiquement réalisés ont pour expression :

$G'(\sigma) = G(\sigma) \ast d(\sigma)$ avec $d(\sigma) = T[D(\delta)]$ (*fig.* 8*a* et 8*b*).

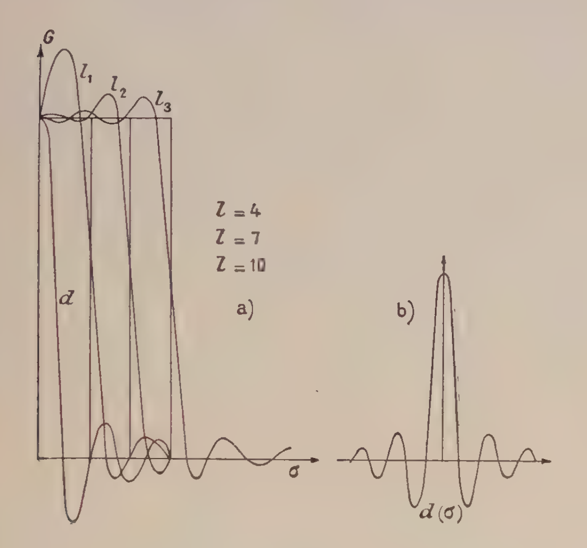


FIG. 8*a*. — Filtres non apodisés. FIG. 8*b*. — $d(\sigma)$.

Elles présentent donc des oscillations (phénomènes de Gibbs) et s'éloignent d'autant plus des courbes théoriques que le quotient $l = \Delta\sigma_0/1/2L'$ est plus petit. Pour amortir ces oscillations, il faut pondérer la réponse percussionnelle $F'(\delta)$ par une fonction convenable, par exemple

$$A'(\delta) = [1 - (\delta/L')^2]^2.$$

Alors :

$G''(\sigma) = G(\sigma) \ast a(\sigma)$ avec $a(\sigma) = T[A'(\sigma)]$ (*fig.* 9*a* et 9*b*).

Pour les fréquences limites le filtre introduit une altération de l'amplitude. Si on appelle $\Delta\sigma$ la zone utilisable du filtre pour laquelle l'altération est, par

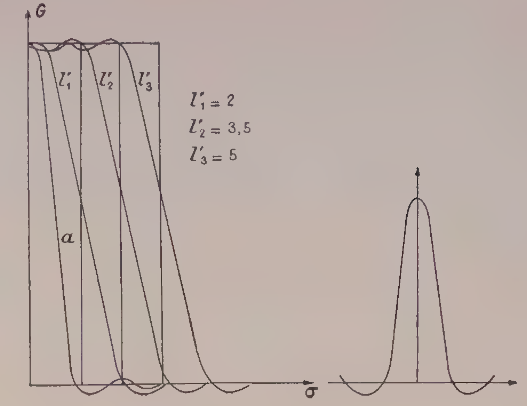


FIG. 9*a*. — Filtres apodisés. FIG. 9*b*. — $a(\sigma)$.

exemple, inférieure à 1/100 (*fig.* 10*a*), on peut définir un facteur de qualité du filtre par :

$$\varphi = \Delta\sigma/\Delta\sigma_0.$$

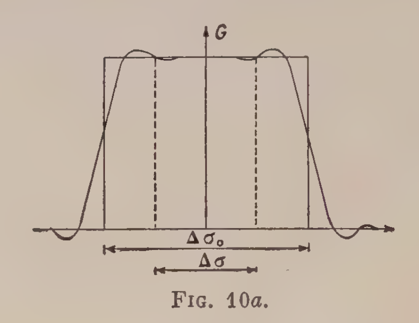


FIG. 10*a*.

Par exemple avec la fonction de pondération $A'(\delta)$ envisagée :

$$\varphi = \frac{L'\Delta\sigma_0 - 2,2}{L'\Delta\sigma_0} \quad (\textit{fig. } 10b).$$

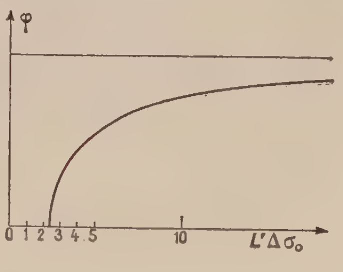


FIG. 10*b*.

II. **Réalisation.** — Pour réaliser avec un ordinateur la convolution :

$$I''(\delta) = I'(\delta)\,.\,A(\delta) \ast F(\delta)\,.\,A'(\delta) \qquad (5)$$

on ne peut utiliser que des valeurs discrètes de l'interférogramme et de la réponse percussionnelle.

Nous allons montrer que lorsqu'on fait avec des valeurs discrètes équidistantes la convolution de 2 fonctions à spectre limité on obtient bien des valeurs discrètes du produit de composition ; mais si les fonctions ont un spectre illimité, on ne peut obtenir par cette méthode que des valeurs approchées du produit de composition, l'approximation étant d'autant meilleure que le pas h' est choisi plus petit.

1° Convolution de 2 fonctions a spectre limité. — Soient 2 fonctions $E(\delta)$ et $K(\delta)$ ayant des spectres limités $e(\sigma)$ et $k(\sigma)$ comme l'indiquent les figures 11*a* et 11*b*. Leur convolution s'écrit :

$$P(\delta) = E(\delta) \ast K(\delta). \qquad (6)$$

Comparons $P(\delta)$ et la convolution :

$$P'(\delta) = h'[E(\delta) \, . \, R_{h'}(\delta) \ast K(\delta) \, . \, R_{h'}(\delta)] \qquad (7)$$

$R_{h'}(\delta)$ étant une distribution de Dirac à support périodique de pas h'. La transformée de Fourier de ce produit de composition s'écrit :

$$p'(\sigma) = \frac{1}{h'} [e(\sigma) \ast R_{1/h'}(\sigma)] \, . \, [k(\sigma) \ast R_{1/h'}(\sigma)]$$

(*fig.* 11*c*, 11*d*, 11*e*).

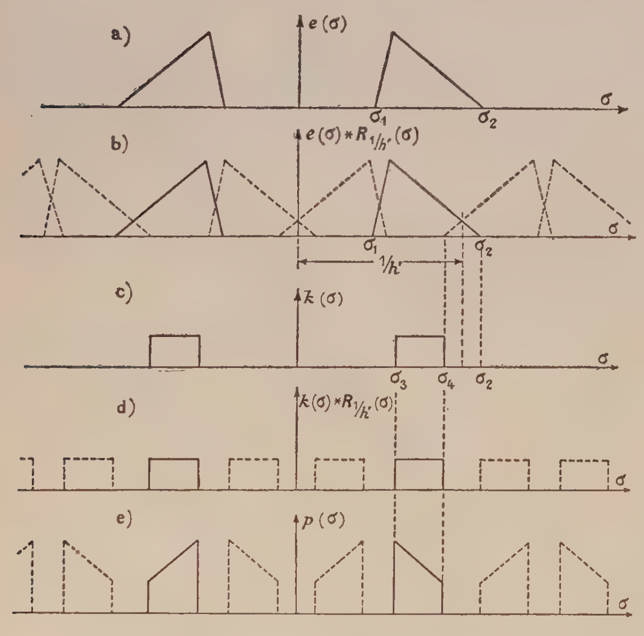


Fig. 11*a*, 11*b*, 11*c*, 11*d*, 11*e*.

C'est une fonction périodique de pas h'. Supposons que h' ait été choisi de telle sorte que les zones qui se recouvrent de la fonction

$$e(\sigma) \ast R_1/h'(\sigma)$$

ne pénètrent pas dans le domaine occupé par $k(\sigma) \ast R_1/h'(\sigma)$, ce qui correspond dans notre cas à : $1/h' = (\sigma_2 - \sigma_4)/2$. On voit immédiatement que dans ce cas :

$$p'(\sigma) = \frac{1}{h'} [e(\sigma) \ast k(\sigma)] \, . \, R_{1/h'}(\sigma).$$

On en déduit que sa transformée de Fourier a pour expression :

$$P'(\delta) = P(\delta) \, . \, R_{h'}(\delta). \qquad (8)$$

Les nombres calculés $P'(\delta)$ sont donc bien une série de valeurs discrètes équidistantes du produit de composition cherché $P(\delta)$.

2° Convolution de deux fonctions a spectre illimité. — Quand les deux fonctions ont des spectres illimitées les relations entre $P(\delta)$ et $P'(\delta)$ sont beaucoup plus complexes. Nous examinerons en détail uniquement un cas particulier, celui de la convolution d'un interférogramme $I'(\delta)$ enregistré à travers un simple filtre RC, de constante de temps $\tau = R\,C$, et de la fonction $F'(\delta)$ définie précédemment, puisque c'est celui qui nous intéresse. La fonc tion calculée a alors la forme :

$$P'(\delta) = I''(\delta) \, . \, R_{h'}(\delta). \qquad (8 \textit{ bis})$$

Elle ne prend que des valeurs discrètes et a évidemment un spectre périodique. L'interférogramme continu $I''(\delta)$ qui aurait les valeurs précédemment calculées pour des points d'abscisse $\delta = ph'$ a lui un spectre non périodique.

Sans nous préoccuper de l'expression exacte de $I''(\delta)$ ainsi défini nous allons préciser le spectre du bruit contenu dans $I''(\delta)$ et dans sa transformée de Fourier.

La courbe de gain correspondant à la réponse percussionnelle $F'(\delta) \, . \, R_{h'}(\delta)$ est une fonction périodique de période $1/h'$ (*fig.* 12). Le spectre du bruit

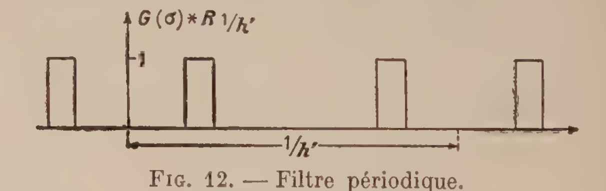


Fig. 12. — Filtre périodique.

contenu dans l'interférogramme continu $I''(\delta)$ a alors pour expression :

$$\mathcal{B}''_p(\sigma) = \mathcal{B}_p(\sigma) \, [|G(\sigma)|^2 \, R_{1/h'}(\sigma)] \quad (\textit{fig. } 13) \qquad (9)$$

et l'écart moyen quadratique des fluctuations dans $I''(\delta)$ vaut :

$$\sigma'^2_x = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{B}''_p(\sigma) \, d\sigma.$$

Il est évidemment inférieur à l'écart moyen quadratique des fluctuations dans $I'(\delta)$ qui vaut

$$\sigma^2_x = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{B}_p'(\sigma) \, d\sigma$$

et sera d'autant plus faible que I/h' sera plus grand donc que le pas h' utilisé pour faire la convolution sera plus petit. Étant donnée la méthode de calcul, le pas h utilisé pour faire la transformée de Fourier de $I''(\delta)$ qui ne dépend plus que de la largeur $\Delta\sigma$ du spectre optique à étudier et de sa position par rapport à l'origine est obligatoirement un multiple de h' :

$$h = \chi h'.$$

La distance séparant deux pics de la fonction d'appareil est alors :

$$\frac{1}{h} = \frac{1}{\chi}\frac{1}{h'}.$$

C'est un sous-multiple de I/h'. Rappelons que la puissance moyenne des fluctuations dans le spectre obtenu par transformation de Fourier de l'interférogramme est égale à l'énergie découpée dans le spectre du bruit par le carré de la fonction d'appareil [1]. L'écart moyen quadratique des fluctuations dans le spectre calculé à partir de $I''(\delta)$ avec un pas h est rigoureusement le même que celui qu'on aurait obtenu avec un pas h' puisque les pics supplémentaires de la fonction d'appareil tombent en des endroits où le spectre du bruit est nul (*fig.* 13).

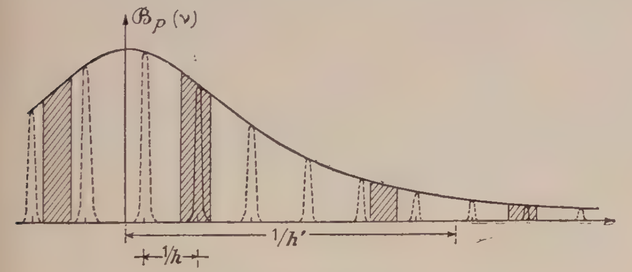


Fig. 13. — Fonction d'appareil de période $1/h$. explorant le spectre du bruit contenu dans $I''(\delta)$.

Le problème du calcul de l'écart moyen quadratique des fluctuations dans le spectre obtenu par transformée de Fourier numérique d'un interférogramme enregistré à travers un simple filtre RC a déjà été traité [1]. On montre que la variance dans le spectre calculé avec un pas h : $\sigma_x'^2$ est liée à la variance σ_x^2 qu'on aurait dans le spectre calculé par une intégrale de Fourier par la relation :

$$\sigma_x'^2 = \sigma_x^2\, \Phi_{\nu_0}(h/\tau)$$

avec

$$\Phi_{\nu_0}(h/\tau) = \frac{h}{2\tau}\frac{\sin h\, h/\tau}{\cos h\, h/\tau - \cos 2\pi\nu_0 h}$$

ν_0 étant la fréquence particulière envisagée.

Donc, dans notre cas, l'écart moyen quadratique des fluctuations dans le spectre final $\sigma_x''^2$ sera lié à l'écart moyen quadratique minimum qu'on aurait eu en calculant directement par une intégrale la transformée de Fourier de $I'(\delta)$ par la relation :

$$\sigma_x''^2 = \sigma_x^2\, \Phi_{\nu_0}(h'/\tau)$$

avec

$$\Phi_{\nu_0}(h'/\tau') = \frac{h'}{2\tau}\frac{\sin h\, h'/\tau}{\cos h\, h'/\tau - \cos 2\pi\nu_0 h'} \quad (\textit{fig. } 14) \qquad (10)$$

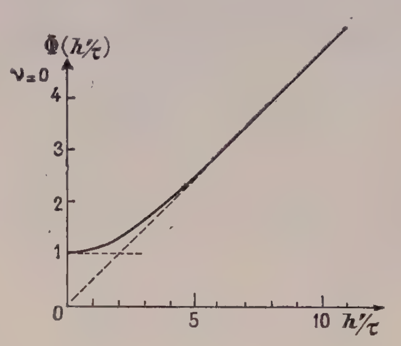


Fig. 14. — Fonction $\Phi_0(h'/\tau)$.

h' étant cette fois le pas choisi pour faire la convolution [1].

Donc pour obtenir à partir de $I''(\delta)$ le même rapport s/b dans le spectre que lorsqu'on fait directement la transformée de $I'(\delta)$, il faut relever autant de valeurs sur $I'(\delta)$. Mais le nombre de valeurs de $I''(\delta)$ qu'on calculera et qu'on utilisera pour faire la transformée de Fourier sera notablement inférieur. Il sera déterminé uniquement par la largeur du spectre optique et sa position par rapport à l'origine.

On peut évaluer la perte S en rapport s/b qui résulte du fait que h' est fini en faisant le quotient du rapport s/b obtenu avec h' ayant une valeur déterminée à celui qu'on obtiendrait avec h' infiniment petit :

$$S = \sqrt{\frac{\Phi(0)}{\Phi_{\nu_0}(h'/\tau')}} \quad (\textit{fig. } 14 \textit{ bis}).$$

Fig. 14 *bis*. — Variation du rapport s/b dans le spectre final en fonction du pas h' avec lequel est faite la convolution.

On voit d'après la figure 14 *bis* qu'il y a intérêt,

(1) Les courbes $\Phi_{\nu_0}(h/\tau')$ sont pratiquement indépendantes de ν_0.

comme dans le cas d'une transformée de Fourier directe, à choisir h' de l'ordre de τ.

Méthode de calcul. — Le calcul comprend 5 parties distinctes :

1° Calcul des N' valeurs de la réponse percussionnelle $F'(\delta)$ du filtre avec $N' = L'/h'$.

2° Pondération de ces N' valeurs de $F'(\delta)$ par $A'(\delta)$.

3° Pondération de l'interférogramme $I'(\delta)$ par $A(\delta)$.

4° Calcul du produit de composition

$$I''(\delta) = I'(\delta).A(\delta) * F'(\delta).A'(\delta).$$

5° Calcul de la transformée de Fourier en cosinus de $I''(\delta)$.

La durée des 3 premières opérations est négligeable devant celle des deux dernières (1). Le temps du calcul du produit de composition peut se mettre sous la forme :

$$\mathcal{T}_c = kN'n \text{ secondes}$$

N' étant le nombre de valeurs discrètes de $F'(\delta)$ utilisées, n le nombre de points de $I''(\delta)$ calculées et k un coefficient numérique qui dépend de la machine utilisée. Nous donnons sa valeur pour l'ordinateur 704 IBM utilisé dans un problème pour lequel le nombre de points d'entrée N (qui n'intervient pas directement dans le calcul de $\mathcal{T}_c$, mais seulement par l'intermédiaire de n) est supérieur au nombre de mémoires rapides. Ceci oblige à faire entrer les valeurs N en plusieurs fois et augmente considérablement le temps de calcul. Dans ces conditions : $k = 10^{-3}$. Rappelons que le temps de calcul d'une transformée de Fourier classique à partir des N valeurs relevées sur l'interférogramme serait :

$$\mathcal{T}_F = 0{,}8.10^{-3}\, NN_1 \text{ secondes}$$

N_1 étant le nombre de points de sortie ; on peut l'évaluer en fonction de n, nombre minimum de points utilisés pour faire la transformée de Fourier n est de l'ordre de $2M$, M étant le nombre d'éléments spectraux. Si on calcule 3 points par élément spectral pour faciliter le tracé du spectre :

$$N_1 = 3M = (3/2)n.$$

Dans ce cas :

$$\mathcal{T}_F = 1{,}2.10^{-3}\, Nn \text{ secondes}$$

ce qui conduit avec l'ordinateur 704 utilisé dans les conditions que nous avons précisées à :

$$\mathcal{T}_c/\mathcal{T}_F = 0{,}8\, N'/N.$$

(1) Les sinus et cosinus qui interviennent dans le calcul de $F'(\delta)$ aussi bien que dans le calcul de la transformée de Fourier de $I''(\delta)$ sont calculés par récurrence à l'aide des formules de Tchébicheff :

$$\cos(p+1)x = 2\cos x \cos px - \cos(p-1)x$$
$$\sin(p+1)x = 2\cos x \sin px - \cos(p-1)x.$$

Examinons dans un cas particulier le gain de temps qu'on peut réaliser en faisant un filtrage mathématique. Supposons que le spectre à étudier s'étende sur un domaine

$$\Delta\sigma = \sigma_M - \sigma_m = \sigma_M/5 \quad (\textit{fig. } 15)$$

et que l'interférogramme soit enregistré à travers un simple filtre passe-bas. Ce filtre introduit des déphasages pour les diverses fréquences contenues dans le signal. Ces déphasages se traduisent dans le spectre reconstitué par une dissymétrie de la fonction d'appareil [1]. Si on tolère une dissymétrie de 1/100 entre les hauteurs de deux premiers pieds négatifs on peut choisir une constante de temps :

$$\tau = 1/2\pi\sigma_M.$$

Le spectre optique et le spectre du bruit ont alors la position indiquée dans la figure 15. Si on

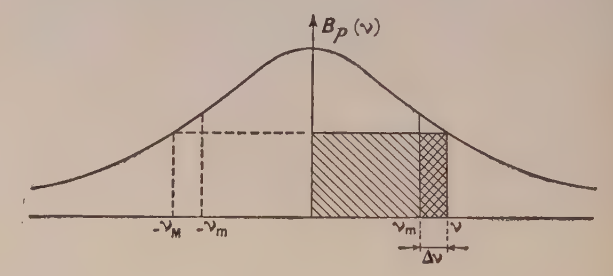


FIG. 15. — $h' = 1/2\nu_M$ $h/\tau = \pi$ $S = 0{,}7$ $h = 5h'$.

veut obtenir dans le spectre final un rapport s/b qui soit les 7/10 du rapport s/b maximum, il faut choisir h' tel que [1] :

$$h'/\tau = \pi$$

c'est à dire :

$$h' = 1/2\sigma_M.$$

Supposons de plus que nous voulions traiter ce problème à la résolution 6 000 ; des relations :

$$N = 1/h' \quad \text{et} \quad R = L\sigma_M.$$

On déduit que :

$$N = 12\,000.$$

L'élément spectral vaut :

$$\delta\sigma = \sigma_M/6\,000$$

et le spectre à étudier contient :

$$M = \Delta\sigma/\delta\sigma = 12\,000 \text{ éléments spectraux.}$$

Si on calcule 3 points par élément spectral, le calcul de la transformée de Fourier directe durerait :

$$\mathcal{T}_F = 0{,}8.10^{-3} \times 12\,000 \times 3\,600 = 9 \text{ heures } 36 \text{ minutes.}$$

Pour réaliser un filtrage numérique pratiquement parfait : $\varphi = 0{,}98$, il faut d'après la figure 10*b* choisir

$$\Delta\sigma\, L' = 60 \quad \text{soit} \quad L' = 300/\sigma_M \quad \text{et} \quad N' = L'/h' = 600.$$

Le temps de calcul du produit de composition correspondant est

$$\mathcal{T}_c = 600 \times 2\,400 \times 10^{-3}\ \mathrm{s} = 24\ \text{minutes.}$$

La nouvelle transformée de Fourier demande alors :

$$\mathcal{T}_F = 0{,}8.10^{-3} \times 2\,400 \times 3\,600\,\mathrm{s} = 1\ \mathrm{h}\ 55\ \text{minutes.}$$

d'où une réduction du temps de calcul total par un facteur 4,15.

III. Vérifications expérimentales. — Elles portent sur deux points précis : calcul de l'écart moyen quadratique des fluctuations dans $I''(\delta)$ et comparaison de deux spectres obtenus à partir d'un même interférogramme, l'un par transformée de Fourier directe avec un pas h', l'autre après filtrage numérique, le pas utilisé pour faire la convolution étant également h'.

1° Écart moyen quadratique des fluctuations dans $I''(\delta)$. — Soit un interférogramme $I'(t)$ constitué uniquement par du bruit (*fig.* 16*a*) [1].

Constante de temps : $\tau = 2s$.

Spectre de puissance du bruit :

$$\mathcal{B}_p(\nu) = \frac{\mathcal{B}_p(0)}{1 + (2\pi\nu\tau)^2} \quad (\textit{fig. } 16b).$$

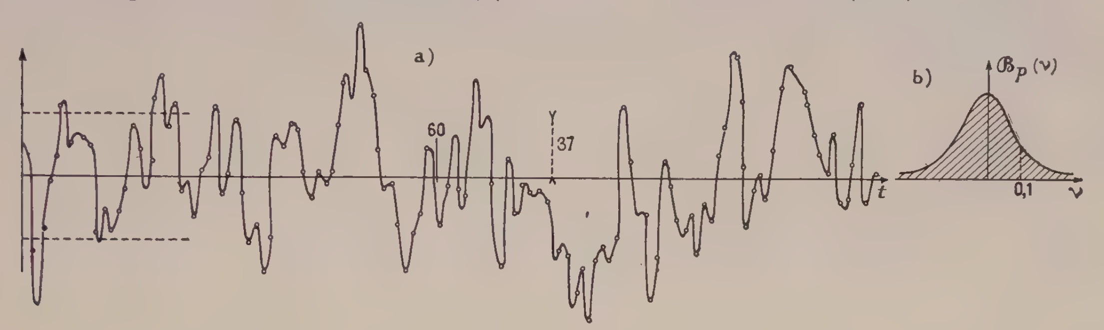


Fig. 16*a*. — $I'(t)$, $h' = 1{,}2$ s. Fig. 16*b*.

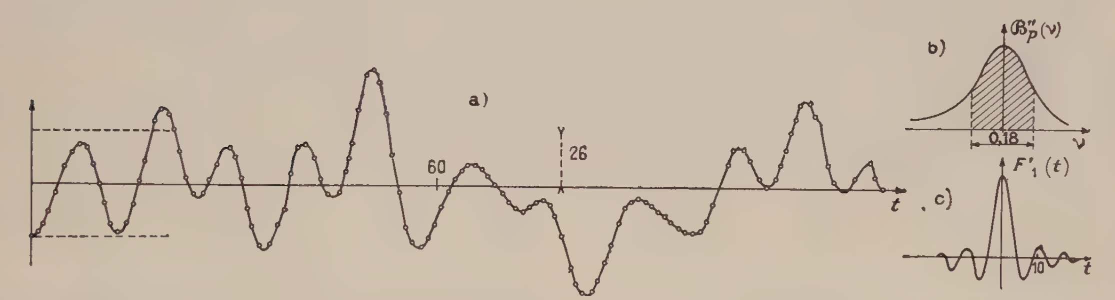


Fig. 17*a*. — $I_1(t)$, Fig. 17*b*. — Courbe de gain du filtre, Fig. 17*c*. — Réponse percussionnelle du filtre.

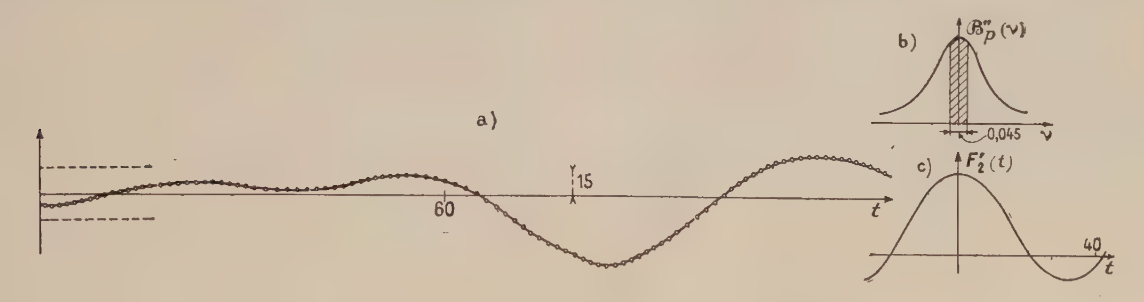


Fig. 18*a*. — $I_2(t)$, Fig. 18*b*, Fig. 18*c*.

Écart moyen quadratique des fluctuations :

$$\sigma_{\mathcal{B}}^2 = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{B}_p(\nu)\, d\nu = \mathcal{B}_0/4.$$

Avec l'échelle arbitraire employée : $\sigma_{\mathcal{B}} = 37$ u.

[1] Les variables sont ici t et ν, proportionnelles à δ et σ puisqu'on a $\delta = Vt$ et $\nu = \sigma V$, V étant le double de la vitesse du miroir mobile de l'interféromètre à 2 ondes employé.

a) 1er *filtrage.* — Le filtre est centré sur l'origine ; largeur du filtre : $\Delta\nu_0 = 0{,}09$ Hz (*fig.* 17*b*).

Sa réponse percussionnelle est représentée par la figure 17*c*.

Si h' était nul, l'écart moyen quadratique des fluctuations dans $I''_1(t)$ aurait pour valeur :

$$\sigma'^2_x = \mathcal{B}_p(0) \int_{-\frac{\Delta\nu_0}{2}}^{+\frac{\Delta\nu_0}{2}} \frac{d\nu}{1 + (4\pi\nu)^2}$$

$$= \mathcal{B}_p(0) \, [\text{Arc tg } 4\pi\nu|_{-\Delta\nu/2}^{+\Delta\nu/2}.$$

Avec les unités choisies on trouverait :

$$\sigma'^2_x = \sigma^2_x \, 1{,}68/\pi \quad \text{et} \quad \sigma'_x = 27 \text{ u.}$$

Le pas utilisé h' étant de 1,2 s, le bruit dans $I''_1(t)$ est légèrement supérieur. D'après la courbe 14 *bis* pour $h'/\tau = 0{,}6$, $S = 0{,}98$ donc σ'_x devrait être :

$$\sigma'_x = 27 \times 1{,}02 = 27{,}54.$$

La valeur expérimentale est : 26 u (*fig.* 17*a*).

b) 2e *filtrage.* — Le filtre est centré sur l'origine ; largeur du filtre $\Delta\nu_0 = 0{,}0225$ Hz (*fig.* 18*b*). Sa réponse percussionnelle est représentée sur la figure 18*c*.

Écart moyen quadratique des fluctuations prévues avec $h' = 1{,}2$ s.

$$\sigma'_x = 14{,}5 \text{ u.}$$

Valeur expérimentale : 15 *u* (*fig.* 18*a*).

Les 2 interférogrammes $I''_1(t)$ et $I''_2(t)$ paraissent lissés par rapport à $I'(t)$. Leurs rayons de corrélation sont de l'ordre de l'inverse du double des fréquences de coupure soit 6 s pour le premier et 24 s pour le second.

2° Comparaison d'un spectre obtenu par transformée de Fourier directe avec un spectre obtenu après filtrage mathématique. — Soit un interférogramme synthétique $\mathcal{I}'(t)$ obtenu en ajoutant au bruit précédent $I'(t)$ une constante. Le spectre correspondant se compose d'une raie à la fréquence 0 à laquelle se superpose un bruit $X(\sigma)$.

Dans le spectre $B'_p(\nu)$ obtenu par transformée de Fourier directe avec le pas $h' = 1{,}2$ s, l'écart moyen quadratique des fluctuations mesuré sur le spectre vaut $\sigma'_x = 1\,280$ u (*fig.* 19*a*).

La transformée de Fourier de l'interférogramme $I''_2(t)$ obtenu avec le filtre de largeur 0,0225 Hz donne le spectre 19*b*. Elle a été effectuée avec le pas h maximum soit $h = 18\,h'$.

Le spectre $B''_p(\nu)$ est évidemment périodique de période 0,045 Hz, donc il est différent dans son ensemble de $B'_p(\nu)$, mais les parties comprises entre $\nu = 0$ et $\nu = 0{,}0225$ Hz sont rigoureusement identiques et l'écart moyen quadratique des fluctuations σ'_x vaut aussi 1 280 u.

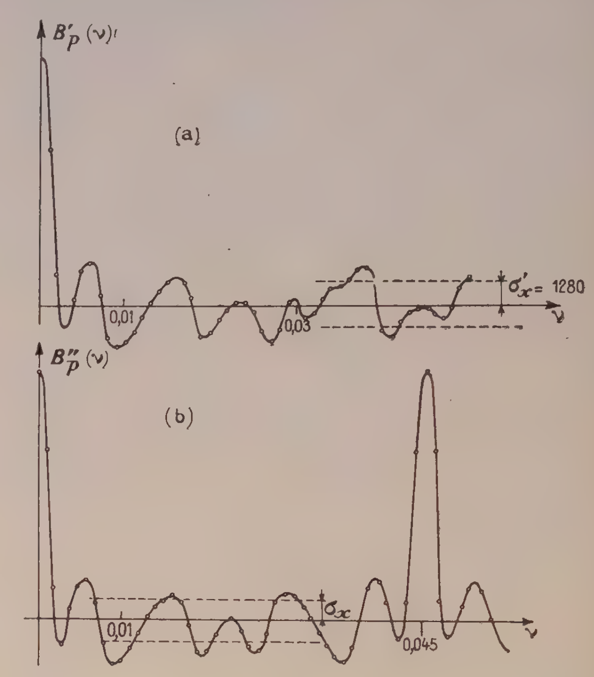


Fig. 19*a*. — Spectre obtenu par TF directe : $h' = 1{,}2$ s.
Fig. 19*b*. — Spectre obtenu après filtrage numérique : $h' = 1{,}2$ s ; $h = 18\,h'$.

IV. **Conclusion.** — Pour obtenir, avec un filtrage mathématique, un rapport s/b donné dans le spectre, le pas h' qui est à utiliser pour faire la convolution est exactement le même que celui qui serait utilisé pour faire la transformée de Fourier directe. On doit donc choisir h' de l'ordre de τ, constante de temps qui a servi à enregistrer l'interférogramme. Donc on relève autant de points sur l'interférogramme. Mais la transformée de Fourier est faite à partir du nombre de points minimum pour qu'il n'y ait pas recouvrement des spectres optiques, la valeur du pas h ne dépendant plus que de la largeur du spectre optique et de sa position par rapport à l'origine, d'où une réduction considérable du temps de calcul (1).

Les auteurs remercient le Comité Européen de Calcul Scientifique pour ses attributions d'heures de calcul à l'ordinateur 704 IBM.

Manuscrit reçu le 14 janvier 1961.

(1) La méthode du filtrage numérique a permis d'étudier dans un temps raisonnable, par transformation de Fourier, la lumière de recombinaison intrinsèque dans le germanium.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Connes (J.), *Revue d'Optique*, à paraître, février 1961.
[2] Mertz (L. W.), Symposium de Stockholm, 1959.

EFFET D'IMPURETÉS NON MAGNÉTIQUES DE SUBSTITUTION SUR LES COUPLAGES MAGNÉTIQUES DES MÉTAUX APPLICATION A LA RÉSISTIVITÉ ÉLECTRIQUE

Par Y. A. ROCHER (*),

Résumé. — La dissolution d'impuretés non magnétiques dans un métal magnétique est accompagnée de fortes variations des propriétés électriques et magnétiques. Pour tenir compte de ces effets, un modèle simple est étudié, dans lequel l'impureté couple magnétiquement deux atomes magnétiques diamétralement opposés par rapport à elle. Dans la limite des approximations de champ moléculaire et de spins classiques, le déplacement du point de transition, la forme des corrélations de spin à haute température, les modifications de structure magnétique autour d'une impureté à basse température, sont étudiés en fonction du signe et de la force de cette interaction indirecte. Les résultats obtenus sont appliqués au calcul de la résistivité électrique. Enfin, l'étude de résultats expérimentaux sur les alliages Mn Cu et Pu Al montre que ce modèle conviendrait particulièrement bien pour expliquer les propriétés de ces alliages.

Abstract. — The presence of non magnetic impurities in a magnetic metal strongly affects its electrical and magnetic properties. In order to explain these effects, a simple model is studied, in which the spins of two magnetic atoms are coupled through an intermediate impurity. Within the limits of molecular field and classical spin approximations, the displacement of the transition temperature, the high temperature shape of spin correlations, the low temperature changes in magnetic structure around an impurity are studied and related to the sign and strength of the indirect interaction. The results are used to calculate the electrical resistivity. The model seems to explain particularly well the properties of Mn Cu and Pu Al alloys.

I. **Introduction.** — Des études récentes ont permis de relier certaines propriétés physiques des métaux magnétiques, la résistivité électrique [1], [2] et le pouvoir thermoélectrique par exemple, à la structure magnétique de ces métaux. Ainsi la résistivité par désordre de spin a-t-elle été mise en évidence ; dans certains cas, elle est bien supérieure à la résistivité due aux phonons.

La substitution à un atome magnétique d'un atome non magnétique (Al, Cu, Zn, Ga, etc...) perturbe localement la structure magnétique du métal et l'effet doit s'en faire sentir sur les propriétés magnétiques (températures de Curie ou de Néel, moment magnétique, susceptibilité, spectre de diffraction de neutrons) et sur les propriétés électriques. Expérimentalement, en effet, on observe un abaissement des points de Curie ou de Néel, une diminution du moment magnétique atomique, en général proportionnels à la concentration C d'impuretés, mais avec un facteur de proportionnalité inférieur, égal ou supérieur à l'unité. Dans certains cas, on observe de très fortes résistivités résiduelles à 0 °K, plus ou moins proportionnelles à la concentration d'impuretés, et associées à de très grandes sections efficaces de diffusion par atome d'impureté.

Ces faits suggèrent que l'impureté non magnétique n'a pas un rôle purement passif ; s'il en était ainsi, en effet, les variations relatives du point de Curie et du moment magnétique seraient égales à la concentration, et les sections efficaces de diffusion de l'ordre des sections atomiques. L'action des impuretés peut alors être recherchée dans deux directions : 1) les impuretés peuvent modifier directement la structure électronique des atomes voisins dans la matrice ; 2) sans changer appréciablement cette structure, les impuretés peuvent simplement influer sur l'orientation des moments magnétiques à leur voisinage, en changeant localement la nature des couplages magnétiques.

Il est bien connu que, dans le nickel et le cobalt, la plupart des impuretés non magnétiques réduisent le moment magnétique dans des proportions plus fortes que s'il y avait simple dilution du métal ferromagnétique [3], [4]. Dans ces alliages, les impuretés réduisent donc les moments magnétique des atomes voisins de la matrice ; un modèle du premier type est donc vraisemblablement nécessaire.

On sait, par contre, que beaucoup d'impuretés non magnétiques diluent le moment magnétique du fer en proportion de leur concentration, donc n'affectent guère la structure électronique de ce métal. Des considérations théoriques [5] suggèrent qu'il doit en être de même pour les alliages d'autres métaux de transition porteurs de moments permanents (Cr, Mn, ...). Tel doit aussi être le cas des alliages des métaux de terres rares et peut-être de certains métaux lourds comme le plutonium, sur lequel nous reviendrons à la fin de cet article. Dans tous les cas, on peut penser un modèle du second type suffisant.

C'est ce modèle simple que nous allons dévelop-

(*) Faculté des Sciences d'Orsay (Seine-et-Oise), France, Service de Physique des Solides, Groupe II, B. P. n° 11.

per. Nous montrerons qu'il permet d'expliquer les maigres résultats expérimentaux. Il prédit certaines relations entre les effets des impuretés sur diverses propriétés : ordre local, point de Curie, résistivité. La vérification de ces relations dans d'autres alliages permettrait de voir dans quelle mesure ce modèle est valable.

Nous supposerons donc que l'impureté ne modifie pas les moments magnétiques de la matrice, mais introduit un couplage indirect entre deux atomes magnétiques diamètralement opposés par rapport à elle. Ce couplage de superéchange peut être, suivant le cas, ferromagnétique ou antiferromagnétique. Nous allons étudier les modifications locales de structure magnétique entraînées par cette interaction : 1) le point de transition se déplacera en fonction de la concentration d'impuretés ; 2) audessus du point de Curie d'un ferromagnétique ou du point de Néel d'un antiferromagnétique, l'allure des corrélations de spin sera modifiée ; 3) à basse température, des distorsions se produiront dans le réseau des spins ordonnés, autour d'une impureté non magnétique.

Nous étudierons ces effets en fonction du signe et de la force du couplage indirect introduit par l'impureté, dans certains cas précis d'ordre magnétique : cas ferromagnétique dans les structures c. c. et c. f. c. ; cas antiferromagnétique dans les structures c. c. (tous les moments portés par les atomes premiers voisins d'un atome donné sont antiparallèles au moment porté par cet atome) et c. f. c. (les moments sont parallèles dans un plan (001) du cube et tous antiparallèles aux moments situés dans les plans voisins). Ces structures sont en effet assez courantes dans les métaux et alliages antiferromagnétiques et semblent en particulier s'appliquer à Mn Cu [6] (c. f. c.) et peut-être Pu Al [7] (c. f. c.).

Dans chaque domaine de température, nous relierons l'effet du couplage indirect à l'évolution de la résistivité électrique.

II. DÉPLACEMENT DU POINT DE CURIE T_c ET DU POINT DE NÉEL T_N.

1. **Cas ferromagnétique.** — Soient J l'intégrale d'échange direct entre atomes du métal et J' l'intégrale d'échange indirect par les atomes d'impureté. Dans l'approximation du champ moléculaire, le champ effectif agissant sur un spin donné sera :

$$H_{n\,\mathrm{eff}} = H_0 + \frac{2JZ}{g\beta}(1-C) < S_n > + \frac{2J'Z}{g\beta} C(1-C) < S_n > \quad (1)$$

avec
g = facteur gyromagnétique,
β = magnéton de Bohr,
Z = coordinance,
H_0 = champ extérieur,
$< S_n >$ = valeur moyenne des spins.

J' est positif ou négatif suivant que le couplage indirect introduit par l'impureté est positif ou négatif.

On a :

$$< S_n > = SB_S\left(\frac{Sg\beta}{kT} H_{n\,\mathrm{eff}}\right). \quad (2)$$

Près du point de Curie, la fonction de Brillouin se développe :

$$SB_S(y) \simeq \frac{1}{3}(S+1)\,y + O_3(y). \quad (3)$$

Il vient donc

$$< S_n > = \frac{1}{3} S(S+1)\frac{g\beta}{kT} \left[H_0 + \frac{2JZ}{g\beta}(1-C) < S_n > + \frac{2J'Z}{g\beta} C(1-C) < S_n >\right]. \quad (4)$$

Pour $H_0 = 0$, nous avons une solution non triviale de l'équation (4) pour :

$$T = T_c = \frac{2}{3k} S(S+1)\,Z(1-C)\,(J + J'C). \quad (5)$$

Pour

$$C = 0, \quad T_c(0) = \frac{2JZ}{3k} S(S+1).$$

Il vient donc

$$\frac{T_c(0) - T_c(C)}{T_c(0)} = C\left[1 - (1-C)\frac{J'}{J}\right]. \quad (6)$$

Ainsi, suivant la nature de l'interaction, la variation relative du point de Curie sera-t-elle plus ou moins rapide que C. Le point de Curie peut même croître avec la concentration si l'intégrale de superéchange J' a le même signe que J et assez forte.

2. **Cas antiferromagnétique.** — Nous décomposons le réseau initial en p sous-réseaux, tels que les premiers voisins d'un atome sur l'un des sous-réseaux soient tous situés sur des sous-réseaux différents de ce sous-réseau. Pour une structure cubique centrée, $p = 2$, et pour une structure cubique à faces centrées, $p = 4$. Notons que dans une telle décomposition, l'atome diamétralement opposé à un atome d'un des sous réseaux par rapport à un premier voisin de cet atome appartient au même sous-réseau.

On obtient alors pour le champ effectif $H_{n\,\mathrm{eff}}$,

agissant sur un spin $\boldsymbol{S}_n$ (pris sur le sous-réseau n) :

$$H_{n\,\text{eff}} = H_0 + \frac{2J}{g\beta}\frac{Z}{p-1}(1-C)\sum_{m\neq n} < \boldsymbol{S}_m > + \frac{2J'Z}{g\beta}C(1-C) < \boldsymbol{S}_n > \quad (7)$$

et

$$< \boldsymbol{S}_n > = \frac{1}{3}S(S+1)\frac{g\beta}{kT}\Big[H_0 + \frac{2J}{g\beta}\frac{Z}{p-1}(1-C) \sum_{m\neq n} < \boldsymbol{S}_m > + \frac{2J'Z}{g\beta}C(1-C) < \boldsymbol{S}_n >\Big]. \quad (8)$$

Nous obtenons en tout p équations analogues pour l'ensemble des p sous-réseaux. Pour H_0 nul, le système des p équations a une solution non triviale pour

$$T = T_N = \frac{2}{3k}S(S+1)(1-C)Z\Big[-\frac{J}{p-1} + CJ'\Big]. \quad (9)$$

Il vient

$$\frac{T_N(0) - T_N(C)}{T_N(0)} = C\Big[1 + (1-C)(p-1)\frac{J'}{J}\Big]. \quad (10)$$

Nous voyons qu'une interaction de superéchange antiferromagnétique accélérera la diminution de T_N avec la concentration d'impuretés. Une interaction ferromagnétique produira l'effet opposé et même, si elle est assez forte, une augmentation de T_N avec la concentration d'impuretés. Notons enfin que les effets d'une impureté seront trois fois plus forts dans la structure c. f. c. que dans la structure c. c.

III. CORRÉLATIONS DE SPIN AU-DESSUS DU POINT DE TRANSITION.

1. **Corrélation de spin.** — Soit un site 0 magnétique. Si l'on y fixe un spin $\boldsymbol{S}_0$ suivant une certaine direction, les autres spins prennent, aux sites R, une orientation moyenne $\boldsymbol{S}_R$, liés à $\boldsymbol{S}_0$ par la fonction de corrélation :

$$\gamma_R = \frac{< \boldsymbol{S}_0 . \boldsymbol{S}_R >}{S(S+1)}.$$

Au voisinage de la température de transition, on relie facilement γ_R à $\gamma_{R'}$, où γ_R est la fonction de corrélation pour les sites R', premiers voisins de R. Ainsi, pour un ferromagnétique, on a, dans l'approximation du champ moléculaire et en se limitant à un développement au deuxième ordre de la fonction de Brillouin (éq. 3) :

$$\gamma_R = \frac{T_c}{T}\frac{1}{Z}\sum_{R'}\gamma_{R'} + O_3(1/T). \quad (11)$$

On montre facilement que pour un métal antiferromagnétique

$$\gamma_R = -\frac{T_N}{T}\frac{p-1}{Z}\sum_{R'}\gamma_{R'}. \quad (12)$$

Un calcul de proche en proche montre que les corrélations γ_1 intéressant les premiers voisins de 0 sont en $1/T$, que les corrélations γ_2 intéressant les deuxièmes voisins sont en $(1/T)^2$, que les corrélations γ_n intéressant les voisins d'ordre n sont en $(1/T)^n$, si l'on ne tient compte que des interactions avec des voisins d'ordre $(n-1)$ au plus.

La substitution à un atome magnétique d'un atome non magnétique couplant entre eux les moments de deux atomes non magnétiques situés de part et d'autre modifie l'aspect des corrélations de spin. On voit immédiatement que si l'un des sites premiers voisins de 0 est occupé par une impureté, la fonction de corrélation γ_x liant le spin de 0 au spin de l'atome diamétralement opposé sera du premier ordre en $1/T$.

Étant données les approximations faites pour obtenir les relations (11) et (12), seuls les termes de corrélation en $1/T$ et $(1/T)^2$ sont significatifs :

Les termes en $1/T$ proviennent des corrélations γ_1 et γ_x ; les termes en $(1/T)^2$ proviennent des corrélations γ_2, γ_{x1}, γ_{xx}. Ces deux termes sont liés à l'environnement des sites x : si les atomes premiers voisins de x sont magnétiques, les corrélations γ_{x1} liant les spins de ces atomes au site central sont en $(1/T)^2$, et si certains sites premiers voisins sont occupés par des atomes non magnétiques, l'interaction indirecte introduira des corrélations γ_{xx} en $(1/T)^2$.

Si l'on suppose la tendance à l'ordre loca isotrope, ce qui n'est strictement vrai qu'à haute température, on détermine aisément à l'aide des relations (11) ou (12) les corrélations γ_1, γ_x, γ_2, γ_{x1}, γ_{xx}, correspondant à une concentration C d'impuretés : (voir tableau p. 370)

2. **Application à la résistivité électrique.** — La présence d'ordre local dans un métal magnétique crée un terme de résistivité additionnel qui a été analysé par de Gennes et Friedel [1]. Si ρ_{om} est la résistivité due au désordre complet des moments magnétiques, la résistivité $\rho_m(T)$ s'exprime de la manière suivante :

$$\rho_m(T) = \rho_{om}\int_0^{\pi}\frac{1}{2}\sin\theta(1-\cos\theta)\,d\theta\sum_R\gamma_R\exp(i.\boldsymbol{k}.\boldsymbol{R}) \quad (13)$$

où $\sum_R$ indique une sommation sur tous les sites magnétiques. En prenant une moyenne sur toutes les orientations possibles du vecteur $\boldsymbol{k}$, et en nous limitant aux corrélations γ_1, γ_x, γ_2, γ_{x1}, γ_{xx}, il vient :

$$\rho_m(T, C) = \rho_{om}(C)\,[1 + Z_1\gamma_1 g(k_F R_1) + Z_2\gamma_2 g(k_F R_2) + Z_x\gamma_x g(k_F R_x) + \Sigma\gamma_{x_1} g(k_F R_{x_1}) + \Sigma\gamma_{xx} g(k_F R_{xx})] \quad (14)$$

où k_F est le vecteur d'onde au niveau de Fermi et

$$g(y) = \frac{1}{2}\int_0^{\pi} \sin\theta(1-\cos\theta)\,\frac{\sin\left(2y\sin\frac{\theta}{2}\right)}{2y\sin\frac{\theta}{2}}\,d\theta = -\frac{1}{y^2}\left(\cos 2y - \frac{\sin 2y}{y} + \frac{1-\cos 2y}{2y^2}\right). \quad (15)$$

Il est intéressant de connaître l'amplitude maximale de l'anomalie de résistivité. Elle est donnée par

$$\frac{\rho_m[T_t(C)] - \rho_{om}}{\rho_{om}} = \varphi(C)$$

où $T_t(C)$ est la température de Curie ou de Néel de l'alliage. On obtient ainsi un développement de

	Structure c. c. — ferromagnétique	Structure c. c. — antiferromagnétique	Structure c. f. c. — ferromagnétique	Structure c. f. c. — antiferromagnétique
γ_1	$\frac{1}{8}\frac{T_c(0)}{T}$	$-\frac{1}{8}\frac{T_N'(0)}{T}$	$\frac{T_c(0)}{12T-4(1-C)T_c(0)}$	$-\frac{1}{4}\frac{T_N(0)}{T+(1-C)T_N(0)}$
γ_x	$\frac{1}{8}\frac{J'}{J}\frac{T_c(0)}{T}$	$-\frac{1}{8}\frac{J'}{J}\frac{T_N'(0)}{T}$	$\frac{1}{12}\frac{J'}{J}\frac{T_c(0)}{T}$	$-\frac{3}{4}\frac{J'}{J}\frac{T_N(0)}{T}$
γ_2	$\frac{1-C}{16}\left[\frac{T_c(0)}{T}\right]^2$	$\frac{1-C}{16}\left[\frac{T_N'(0)}{T}\right]^2$	$\frac{1-C}{3}\frac{T_c^2(0)}{T[12T-4(1-C)T_c(0)]}$	$\frac{1-C}{4}\frac{T_N^2(0)}{T[T+(1-C)T_N(0)]}$
γ_{xx}	$\frac{1}{64}\left[\frac{J'}{J}\frac{T_c(0)}{T}\right]^2$	$\frac{1}{64}\frac{J'}{J}\left[\frac{T_N'(0)}{T}\right]^2$	$\frac{1}{144}\left[\frac{J'}{J}\frac{T_c(0)}{T}\right]^2$	$\frac{9}{16}\left[\frac{J'}{J}\frac{T_N(0)}{T}\right]^2$
γ_{x1}	$\frac{1}{64}\frac{J'}{J}\left[\frac{T_c(0)}{T}\right]^2$	$\frac{1}{64}\frac{J'}{J}\left[\frac{T_N'(0)}{T}\right]^2$	$\frac{1}{12}\frac{J'}{J}\frac{[T_c(0)]^2}{T[12T-3(1-C)T_c(0)]}$ pour $4C(1-C)^2$ sites; $\frac{1}{12}\frac{J'}{J}\frac{[T_c(0)]^2}{T[12T-4(1-C)T_c(0)]}$ pour $7C(1-C)^2$ sites	$\frac{3}{16}\frac{J'}{J}\frac{[T_N(0)]^2}{T\left[T+\frac{3}{4}(1-C)T_N(0)\right]}$ pour $4C(1-C)^2$ sites; $\frac{3}{16}\frac{J'}{J}\frac{[T_N(0)]^2}{T[T+(1-C)T_N(0)]}$ pour $7C(1-C)^2$ sites

$\varphi(C)$ au premier ordre en C, qui se met sous la forme

$$\varphi(C) = u(k_F D) + C(J'/J)\,v(k_F D). \quad (16)$$

Le calcul des fonctions $u(k_F D)$ et $v(k_F D)$ est développée en annexe I pour les diverses structures envisagées et une représentation graphique de ces fonctions est donnée (*fig.* 1*a*, 1*b*, 1*c* 1*d*). Nous avons fait varier $k_F D$ entre les valeurs 2 et 5 ce qui correspond aux cas les plus usuels. On peut

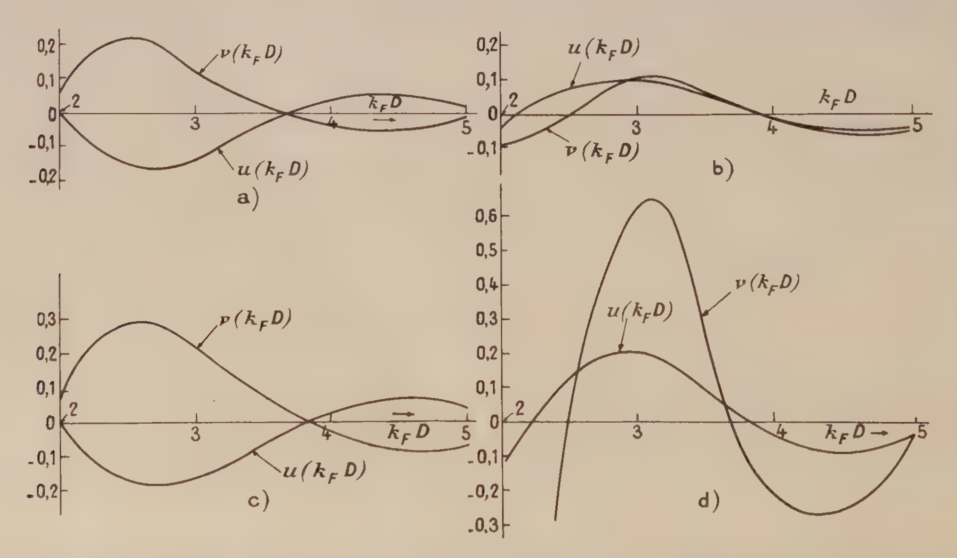


Fig. 1. — Représentation graphique des fonctions $u(k_F D)$ et $v(k_F D)$. — (a) Structure c. c. ferromagnétique. — (b) Structure c. c. antiferromagnétique. — (c) Structure c. f. c. ferromagnétique. — (d) Structure c. f. c. antiferromagnétique.

noter qu'excepté pour de très petits intervalles de variations de $k_F D$ les fonctions u et v sont de même signe pour les substances antiferromagnétiques à basse température et de signes opposés pour les substances ferromagnétiques. En général donc et si J'/J est positif on devra noter une augmentation de $\varphi(C)$ avec la concentration dans les substances antiferromagnétiques ; l'inverse sera observé dans les substances ferromagnétiques. Ce raisonnement s'applique si $k_F D$ reste constant sinon la situation est plus compliquée.

D'une manière générale il ressort que les termes en $(1/T)^2$ et en $(1/T)$ sont comparables au point de transition. On doit donc s'attendre à une décroissance de l'anomalie de résistivité parfois plus rapide que $(1/T)$ au-dessus du point de transition.

IV. ROTATION DES MOMENTS MAGNÉTIQUES VOISINS D'UNE IMPURETÉS DANS LA STRUCTURE MAGNÉTIQUE ORDONNÉE.

1. **Calcul des rotations** — Nous substituons toujours à un atome magnétique une impureté non magnétique qui introduit une interaction indirecte entre deux atomes diamétralement opposés par rapport à elle. Dans les états magnétiques ordonnés que nous nous proposons d'étudier ces deux atomes ont des spins parallèles. Par conséquent si l'interaction indirecte provoque des rotations des spins voisins de l'impureté on voit immédiatement que ces rotations n'auront lieu que si l'impureté introduit une interaction d'échange antiferromagnétique ($J' < 0$). Nous nous bornerons donc à l'étude de ce cas.

Nous prendrons deux approximations de base : champ moléculaire et spins classiques. L'opérateur spin quantique sera remplacé par un vecteur classique de longueur donnée S mais d'orientation libre.

Par raison de symétrie les rotations des spins ont lieu dans le plan défini par les deux atomes et la direction non perturbée de leurs moments dans des sens opposés pour chacun des deux atomes. On montre aisément que dans tous les cas que nous considérons l'axe passant par l'atome non magnétique et portant la direction des moments non perturbés est axe de symétrie de l'ensemble pour la configuration résultante stable. La distorsion du réseau de spins s'étend en principe assez loin mais dans un cas un peu différent de Gennes [8] a montré que l'effet d'une impureté diminue comme l'inverse du carré de la distance pour deux sites premiers voisins initialement perturbés. Comme nous avons huit ou douze premiers voisins perturbés nous pouvons penser que l'effet total diminue très rapidement avec la distance. Ainsi pouvons-nous considérer comme nulles les rotations de tous les moments portés par des atomes plus éloignés que les premiers et deuxièmes voisins de l'impureté centrale.

Nous allons indiquer maintenant les configurations pour les divers cas proposés. Le calcul est facile mais long ; aussi pour simplifier la lecture donnerons-nous en annexe II le développement complet de ce calcul pour une structure c. f. c. antiferromagnétique par exemple. Les distorsions sont caractérisées par les rotations ε_1 et ε_2 des moments premiers et deuxièmes voisins respectivement.

1. Cas antiferromagnétique (J et J' négatifs). — a) *Structure c. c.* — Autour d'une impureté A les moments initialement parallèles à l'axe Az prennent l'une des configurations représentées (*fig.* 2). Elles ont toutes la même énergie.

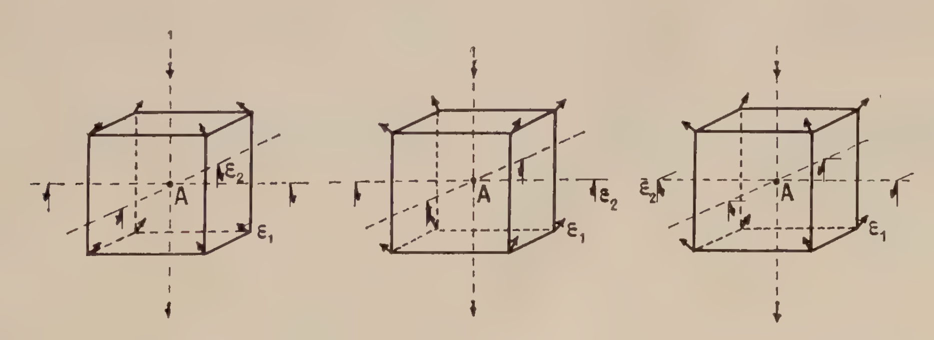


Fig. 2. — Structure c. c. antiferromagnétique. Rotation des moments autour de l'impureté A, aux sites premiers et deuxièmes voisins, dans les trois configurations possibles de même énergie.

Les rotations ε_2 sont liées aux rotations ε_1 par :

$$\operatorname{tg} \varepsilon_2 = (\sqrt{2}/2) \sin \varepsilon_1/(1 + \cos \varepsilon_1) \qquad (17)$$

ou

$$\varepsilon_2 \simeq (\sqrt{2}/4)\varepsilon_1 \text{ si } \varepsilon_1 \text{ est petit.}$$

Outre les solutions $\varepsilon_1 = k\pi$ ε_1 est solution d'une équation du quatrième degré en cos ε_1 dont les racines ne sont pas immédiates. Si ε_1 est petit, alors

$$\cos \varepsilon_1 = \frac{103}{32 |J'/J| - 1} \tag{18}$$

il y a une solution si $|J'/J| \geqslant 3{,}25$.

On vérifie que la configuration stable correspond à $\varepsilon_1 = 0$ si $|J|/J| \leqslant 3{,}25$ et à $\cos \varepsilon_1 = \dfrac{103}{32 |J'/J| - 1}$ si $|J'/J| > 3{,}25$. La solution $\varepsilon_1 = \pi$ n'est jamais stable.

b) *Structure c. f. c.* — Il y a deux configurations possibles, d'égales énergies, représentées figure 3.

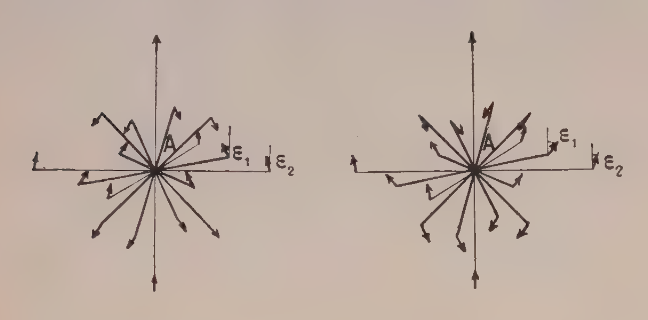


Fig. 3. — Structure c. f. c. antiferromagnétique. Rotation des moments autour de l'impureté A, aux sites premiers et deuxièmes voisins, dans les deux configurations possibles de même énergie.

Nous obtenons

$$\operatorname{tg} \varepsilon_2 = \frac{2 - \sqrt{2}}{4} \sin \varepsilon_1. \tag{19}$$

On voit immédiatement que ε_2 est faible, puisque

$$\operatorname{tg} \varepsilon_2 < \frac{2 - \sqrt{2}}{4} = 0.147.$$

Outre les solutions $\varepsilon_1 = k\pi$, nous obtenons une solution approchée pour cos ε_1

$$\cos \varepsilon_1 \simeq \frac{1}{\frac{6}{7} |J'/J| + 0{,}255}. \tag{20}$$

Cette solution existe si $|J'/J| \geqslant 0{,}87$.

On vérifie encore que la solution $\varepsilon = \pi$, n'est jamais stable, que la solution $\varepsilon = 0$ est stable si $|J'/J| \leqslant 0{,}87$, et que la solution

$$\varepsilon_1 = \operatorname{Arc} \cos \frac{1}{(6/7) |J'/J| + 0{,}255}$$

est stable si $|J'/J| > 0{,}87$.

2. Cas ferromagnétiques (J positif, J' négatif). — a) *Structure c. c.* — Trois configurations de même énergie sont possibles (*fig.* 4), ε_1 et ε_2 prennent les valeurs calculées en fonction de $|J'/J|$ dans le cas antiferromagnétique. La condition de rotation des spins reste la même.

$$|J'/J| > 3{,}25.$$

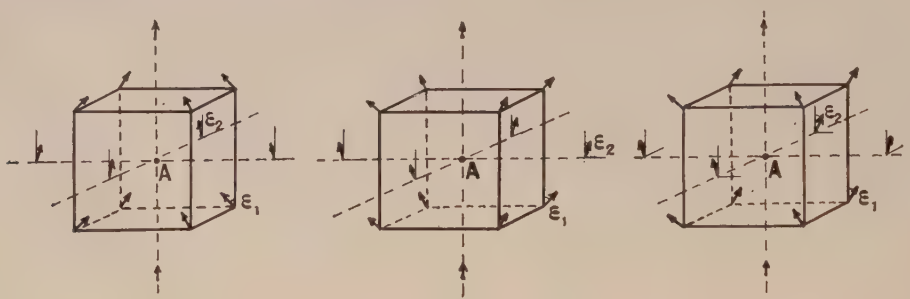


Fig. 4. — Structure c. c. ferromagnétique. Rotation des moments autour de l'impureté A, aux sites premiers et deuxièmes voisins, dans les trois configurations possibles de même énergie.

b) *Structure c. f. c.* — Deux solutions d'égales énergies sont possibles (*fig.* 5). On obtient :

$$\operatorname{tg} \varepsilon_2 = \frac{2 + \sqrt{2}}{4} \left(\frac{\sin \varepsilon_1}{2 + \cos \varepsilon_1} \right) \tag{21}$$

et en outre les solutions $\varepsilon_1 = k\pi$, la racine d'une équation compliquée en cos ε_1 dont la solution pour ε_1 petit est :

$$\cos \varepsilon_1 \simeq \frac{20{,}4}{6|J'/J| - 5{,}9}. \tag{22}$$

La solution existe si $|J'/J| > 4{,}4$.

On vérifie que la solution stable est $\varepsilon_1 \doteq 0$ pour $|J|/J| \leqslant 4{,}4$ et $\varepsilon_1 = \operatorname{Arc} \cos \dfrac{20{,}4}{6|J'/J| - 5{,}9}$ pour $J'/J > 4{,}4$.

La condition pour qu'il y ait rotation des moments autour d'une impureté semble difficile à

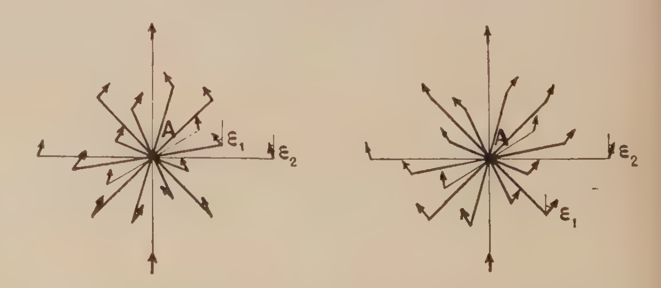


Fig. 5. — Structure c. f. c. ferromagnétique. Rotation des moments autour de l'impureté A, aux sites premiers et deuxièmes voisins, dans les deux configurations possibles de même énergie.

réaliser dans les structures c. c. ($|J'/J| > 3{,}25$ pour les ferromagnétiques et les antiferromagnétiques) et dans les structures c. f. c. ferromagnétiques ($|J'/J| > 4{,}4$). Par contre, dans une structure c. f. c. antiferromagnétique type Mn Cu, des rotations de spins devraient avoir lieu assez fréquemment ($|J'/J| > 0{,}87$).

2. **Résistivité électrique aux basses températures.** — Aux basses températures et en particulier au 0 °K, si les conditions de rotation des moments autour d'une impureté sont réalisées, nous observerons de fortes résistivités résiduelles, d'autant plus fortes que la perturbation s'étendra plus loin. Si la perturbation ne s'étend de façon notable qu'aux premiers voisins d'une impureté, nous aurons $C(Z + 1)$ centres diffusants pour un électron de conductibilité. Le potentiel diffusant est proportionnel aux cosinus des angles ε de rotation des moments, et si l'on suppose que l'approximation de Born est valable, c'est-à-dire que ce potentiel est faible vis-à-vis de l'énergie de Fermi des électrons, la section efficace de diffusion sera donc porportionnelle à $(1 - \cos \varepsilon)^2$. Nous pouvons relier la résistivité ρ_a au 0° absolu à la résistivité ρ_{om} de haute température où le désordre des spins est total et nous obtenons, en supposant que seuls les premiers voisins sont perturbés :

$$\frac{\rho_a}{\rho_{om}} = \frac{C(z+1)^{2/3}\,(1-\cos\varepsilon)^2}{\dfrac{1}{\pi}\displaystyle\int_0^{\pi}\cos^2\theta\,d\theta} = 2C(Z+1)^{2/3}\,(1-\cos\varepsilon)^2$$

Ceci n'est valable qu'à très faible dilution, lorsque les centres perturbateurs n'interagissent pas entre eux. On conçoit que si CZ est voisin de l'unité, la résistivité au 0 °K soit égale à celle de haute température. Dans un tel modèle, la résistivité résiduelle ne sera donc proportionnelle à la concentration d'impuretés que pour une très grande dilution.

Nous pouvons prévoir un intéressant effet dans les substances métamagnétiques c. f. c. Si

$$0{,}87 < |J'/J| < 4{,}4$$

il y a rotation des spins dans l'état antiferromagnétique et cette rotation n'a pas lieu dans l'état ferromagnétique. On devrait observer alors une sensible anomalie de résistivité à la transition. Ce point pourrait être facilement vérifié dans les solutions solides des terres rares métamagnétiques de structure c. f. c. La condition de rotation ne doit pas être très différente pour une structure antiferromagnétique d'un type autre que celui que nous avons étudié.

V. APPLICATION A QUELQUES STRUCTURES MAGNÉTIQUES.

1. **Les alliages Mn Cu quadratiques à faces centrées.** — La phase γ du manganèse, cubique à faces centrées, peut être stabilisée à basse température par des additions de cuivre. Elle prend une déformation quadratique à faces centrées que l'on a pu associer par des mesures de diffraction de neutrons à une structure antiferromagnétique, où les spins sont portés par Oz et ont des directions opposées d'un plan (001) à l'autre. La température de Néel de ces alliages est, pour C faible, une fonction linéaire de la concentration ; si $T_N(0)$ est l'extrapolation du manganèse pur :

$$\frac{T_N(0) - T_N(C)}{T_N(0)} = 3C.$$

En appliquant notre analyse, on en déduit :

$$1 - 3J'/|J| = 3 \quad \text{et donc} \quad J' = -(2/3)\,|J|.$$

Un ion Cu introduirait donc un couplage antiferromagnétique entre deux ions Mn. La condition pour qu'il y ait rotation des spins à basse température n'est pas réalisée ($|J'/J| > 0{,}87$). Effectivement, la résistivité résiduelle du cuivre dans le manganèse reste proportionnelle à la concentration jusqu'à des teneurs assez élevées en cuivre (20 %) et la section efficace de diffusion d'un atome de cuivre est de l'ordre de l'aire atomique (π (1,9 Å)^2).

2. **Les alliages plutonium-aluminium cubiques à faces centrées.** — La structure magnétique de ces alliages n'a pas été obtenue avec certitude. Mais les mesures de résistivité [9] et de chaleur spécifique [10] semblent indiquer une transformation ordre-désordre en dessous de 200 °K. Les mesures de susceptibilité magnétique n'excluent pas un antiferromagnétisme à basse température. Nous désignerons par T_N la température de transformation (extrapolée au plutonium pur : $T_N(0)$)

$$(T_N(0) - T_N(C))/T_N(0) = C[1 + 3(J'/J)\,(1 - C)].$$

On en déduit, si notre analyse s'applique :

$$J'/J = +1{,}8.$$

Les courbes de résistivité présentent une anomalie qui a été associée à un antiferromagnétisme possible à basse température [7], [10]. Un $\rho_m(T_N)/\rho_{om}$ a été calculée [7], et il varie de la manière suivante avec la concentration d'aluminium.

% Al	2,25	3	5	10
$\dfrac{\rho_m(T_N)}{\rho_{om}}$	1,08	1,107	1,13	1,14

Si l'on ne tient pas compte de l'interaction indirecte, l'augmentation du rapport $\rho_m(T_N)/\rho_{om}$ doit être liée à une diminution de $(k_F\,D)$ de 3,5 à 3,3 lorsque la concentration d'aluminium croît, c'est-à-

dire à une diminution du nombre d'électrons de conductibilité, voisin de l'unité pour le plutonium pur [7]. C'est cette interprétation que nous avons donnée précédemment. Si par contre on tient compte d'une interaction indirecte par l'intermédiaire des atomes d'aluminium, il apparaît, d'après les résultats de la section III, et en utilisant la valeur de $J'/J = 1,8$, que $k_F D$ reste sensiblement constant lorsque la concentration d'aluminium varie ; on trouve alors :

% Al	2,25	3	5	10
$k_F D$	3,5	3,475	3,425	3,475

La valeur moyenne de $k_F D = 3,475$ indique la présence de 1 électron de conductibilité par atome dans le plutonium. Ce nombre dépendrait peu de la teneur en aluminium.

La décroissance de l'anomalie au-dessus de la température de transition est sensiblement plus rapide que $(1/T)$. Ce phénomène est bien en accord avec le fait que les coefficients des termes en $(1/T)$ et $(1/T)^2$ dans le développement de $\rho_m(T_c)/\rho_{om}$ sont de même signe et du même ordre de grandeur pour la valeur de $k_F D = 3,475$.

Un ion aluminium introduirait donc un couplage antiferromagnétique entre deux ions plutonium et la valeur $J'/J = 1,8$ trouvée satisfait à la condition pour qu'il y ait rotation des spins à l'état ordonné. Effectivement, on observe expérimentalement de très grandes résistivités résiduelles au 0 °K : à 10 % d'aluminium (et sans doute dès 8 %) la résistivité au 0 °K est égale à la résistivité de haute température. Pour l'alliage à 5 % d'aluminium, on trouve une section efficace de diffusion par centre perturbateur égale à π (3,6 Å)². Comme $r_S = 1,8$ Å, ceci montre bien que la perturbation intéresse les premiers voisins de chaque atome d'aluminium. De la valeur de $|J'/J|$ calculée à partir du déplacement du point de transition, on déduit effectivement une déviation forte des spins sur les premiers voisins seulement :

$$\varepsilon_1 \simeq 55^\circ$$
$$\varepsilon_2 \simeq 6^\circ.$$

3. **Alliages de terres rares.** — Il n'y a pas eu de recherches systématiques des déplacements des points de Curie ou de Néel par des impuretés dans les terres rares. Cependant les résistivités résiduelles au 0 °K, même pour les métaux purifiés, sont élevées, ce qui suggère que notre modèle pourrait s'appliquer. Il serait intéressant de vérifier ce point.

VI. **Conclusion.** — Une interaction indirecte ferromagnétique ou antiferromagnétique par l'intermédiaire d'un ion non magnétique couplant entre eux deux ions magnétiques diamétralement opposés par rapport à lui, semble pouvoir expliquer les propriétés de certains alliages riches en ions magnétiques : abaissement des points de Curie ou de Néel, variation de la résistivité au-dessus du point critique, fortes résistivités résiduelles au 0 °K.

Une étude systématique des résistivités résiduelles au 0 °K de métaux magnétiques dilués en ions non magnétiques permettrait de préciser dans quelles conditions notre modèle s'applique. Des métaux à magnétisme de couche, ou voisins de ce type, comme les terres rares ou le manganèse, semblent particulièrement indiqués pour ces vérifications, qui, si elles étaient en accord avec notre modèle, permettraient de préciser la nature de cet échange indirect. Une interaction de ce type a été envisagée dans les alliages Fe Al à forte teneur en aluminium, compris entre Fe_3 Al et Fe Al [11].

Ajoutons que l'analyse des fonds continus des spectres de diffraction de neutrons à basse température permettrait éventuellement de mettre en évidence les rotations de spin dont nous avons calculé l'amplitude à 0°K.

L'auteur tient à exprimer sa gratitude à M. le Pr J. Friedel qui l'a constamment guidé pendant la préparation de ce travail.

Annexe I : Calcul du terme de résistivité due à l'ordre local. — Nous devons expliciter les coefficients de l'équation (14). Les valeurs calculées pour Z et R sont portées sur le tableau suivant, où D est la distance interatomique.

En utilisant les notations

$$(1 - C)\, T_c(0)/T = 1/\theta_c$$
$$(1 - C)\, T_N(0)/T = 1/\theta_N$$
$$g(k_F D) = g(1)$$
$$g(2 k_F D(= g(2), \quad \text{etc...}$$

Nous obtenons immédiatement les résultats suivants pour les divers cas étudiés :

1. Structure c. c.

— *Cas ferromagnétique.*

$$\frac{\rho_m(T, C)}{\rho_{om}(C)} = 1 + \frac{1}{\theta_c}\Big[g(1) + C\frac{J'}{J}g(2) + \frac{1}{\theta_c} \Big\{\frac{3}{8}g(2/\sqrt{3}) + \frac{C}{64}\frac{J'}{J}[g(3) + 3g(\sqrt{11/3}) + 3g(\sqrt{19/3})] + \frac{C^2}{64}(J'/J)^2[g(4) + 3g(4/\sqrt{3}) + 4g(4\sqrt{2/3}]\Big\}\Big] \quad (24)$$

$$\varphi(C) = g(1) + \frac{3}{8}g(2/\sqrt{3}) + C(J'/J) \Big\{- g(1) - \frac{3}{4}g(2/\sqrt{3}) + (1/64) [g(3) + 3g(\sqrt{11/3}) + 3g(\sqrt{19/3})]\Big\}. \quad (25)$$

	Structure c. c.		Structure c. f. c.	
	Z	R	Z	R
$Z_1,\ R_1$	$8(1-C)$	D	$12(1-C)$	D
$Z_x,\ R_x$	$8C(1-C)$	$2D$	$12C(1-C)$	$2D$
$Z_2,\ R_2$	$C(1-C)$	$2/\sqrt{3}\,D$	$6(1-C)$	$\sqrt{2}\,D$
$Z_{x_1},\ R_{x_1}$	$3C(1-C)^2$	$\sqrt{11/3}\,D$	$4C(1-C)^2$	$\sqrt{3}\,D$
	$3C(1-C)^2$	$\sqrt{19/3}\,D$	$3C(1-C)^2$	$\sqrt{5}\,D$
	$C(1-C)^2$	$3D$	$2C(1-C)^2$	$\sqrt{7}\,D$
			$2C(1-C)^2$	$2\sqrt{3}\,D$
$Z_{xx},\ R_{xx}$	$3C^2(1-C)^2$	$4/\sqrt{3}\,D$	$4C^2(1-C)^2$	$2D$
	$3C^2(1-C)^2$	$4\sqrt{2}/\sqrt{3}\,D$	$2C^2(1-C)^2$	$2\sqrt{2}\,D$
			$4C^2(1-C)^2$	$2\sqrt{3}\,D$
	$C^2(1-C)^2$	$4D$	$C^2(1-C)^2$	$4D$

— *Cas antiferromagnétique.*

$$\frac{\rho_m(T,C)}{\rho_{om}(C)} = 1 - \frac{1}{\theta_N}\Bigg[g(1) + C\frac{J'}{J}g(2) - \frac{1}{\theta_N}\left\{\frac{3}{8}g(2/\sqrt{3}) + \frac{C}{64}\frac{J'}{J}[g(3) + 3g(\sqrt{11/3}) + 3g(\sqrt{19/3})] + \frac{C^2}{64}\left(\frac{J'}{J}\right)^2\left[g(4) + 3g\left(\frac{4}{\sqrt{3}}\right) + 3g\left(4\sqrt{\frac{2}{3}}\right)\right\}\right]\Bigg] \quad (26)$$

$$\varphi(C) = -g(1) + \frac{3}{8}g\left(\frac{2}{\sqrt{3}}\right) + C\frac{J'}{J}\left\{-g(1) + \frac{3}{4}g\left(\frac{2}{\sqrt{3}}\right) - g(2) + \frac{1}{64}\left[g(3) + 3g\left(\sqrt{\frac{11}{3}}\right) + 3g\left(\sqrt{\frac{19}{3}}\right)\right]\right\}. \quad (27)$$

2. Structure c. f. c.

— *Cas ferromagnétique.*

$$\frac{\rho_m(T,C)}{\rho_{om}(C)} = 1 + \frac{3}{3\theta_c - 1}g(1) + \frac{1}{\theta_c}C\frac{J'}{J}g(2) + \frac{1}{\theta_c(3\theta_c - 1)}\left\{\frac{1}{2}g(\sqrt{2}) + \frac{1}{48}C\frac{J'}{J}[3g(\sqrt{5}) + 2g(\sqrt{7}) + 2g(2\sqrt{3})]\right\} + \frac{1}{9\theta_c(4\theta_c - 1)}C\frac{J'}{J}g(\sqrt{3}) + \frac{1}{144}\left(C\frac{J'}{J}\frac{1}{\theta_c}\right)^2[4g(2) + 2g(2\sqrt{2}) + 4g(2\sqrt{3}) + g(4)] \quad (28)$$

$$\varphi(C) = \frac{3}{2}g(1) + \frac{1}{4}g(\sqrt{2}) + C\frac{J'}{J}\left[-\frac{9}{4}g(1) - \frac{5}{8}g(\sqrt{2}) + \frac{1}{27}g(\sqrt{3}) + g(2) + \frac{1}{32}g(\sqrt{5}) + \frac{1}{4\sigma}(g\sqrt{7}) + \frac{1}{48}g(2\sqrt{3})\right]. \quad (29)$$

— *Cas antiferromagnétique.*

$$\frac{\rho_m(T,C)}{\rho_{om}(C)} = 1 - \frac{3}{\theta_N + 1}g(1) - \frac{9}{\theta_N}C\frac{J'}{J}g(2)\frac{1}{\theta_N(\theta_N + 1)}\left\{\frac{3}{2}g(\sqrt{2}) + \frac{3}{16}C\frac{J'}{J}[3g(\sqrt{5}) + 2g(\sqrt{7}) + 2g(2\sqrt{3})]\right\} + \frac{3}{\theta_N(4\theta_N + 3)}C\frac{J'}{J}g(\sqrt{3}) + \frac{9}{16}\left(C\frac{J'}{J}\frac{1}{\theta_N}\right)^2[4g(2) + 2g(2\sqrt{2}) + 4g(2\sqrt{3}) + g(4)] \quad (30)$$

$$\varphi(C) = -\frac{3}{2}g(1) + \frac{3}{4}g(\sqrt{2}) + C\frac{J'}{J}\left[-\frac{9}{4}g(1) + \frac{27}{8}g(\sqrt{2}) + \frac{3}{7}g(\sqrt{3}) - 9g(2) + \frac{9}{32}g(\sqrt{5}) + \frac{3}{16}g(\sqrt{7}) + \frac{3}{16}g(2\sqrt{3})\right]. \quad (31)$$

Annexe II : Calcul de la rotation des moments autour d'une impureté. — Nous calculons les rotations ε_1 et ε_2 des moments portés par les premiers et deuxièmes voisins de l'impureté, en supposant que les rotation de tous les autres moments sont nulles. Il y a deux étapes dans le calcul :

1. Les rotations ε_2 des deuxièmes voisins sont déterminées en fonction des rotations ε_1 des premiers voisins, en minimisant l'énergie d'échange de chaque deuxième voisin avec tous ses voisins.

2. On calcule la variation d'énergie d'échange pour l'ensemble de tous les moments perturbés ; en minimisant celle-ci par rapport à ε_1, on obtient la valeur de ε_1, puis de ε_2.

Nous allons effectuer ce calcul pour une sub-

stance antiferromagnétique de structure c. f. c., type Mn Cu. Dans l'état parfaitement ordonné, les moments sont portés par la direction [001], sont parallèles dans un plan (001) et tous antiparallèles aux moments portés par les atomes situés sur les plans voisins. Notons par (+) et (—) les deux types de moments. A un site (+), substituons un atome A non magnétique. La configuration la plus stable correspond à la fermeture des moments (+) vers l'axe Az et à l'ouverture des moments (—), soit à la solution inverse.

Calculons les rotations des deuxièmes voisins de A. Ce sont des moments (+) et seuls les quatre moments situés dans le plan (001) passant par A pivotent. L'énergie d'échange d'un deuxième voisin (+) avec ses premiers voisins (+) et (—) est :

$$E_{ex} = 2\,|J|\,S(S+1)\left[2\left(\pm\frac{\sqrt{2}}{2}\sin\varepsilon_1\sin\varepsilon_2+\cos\varepsilon_1\cos\varepsilon_2\right) - 2(\mp\sin\varepsilon_1\sin\varepsilon_2+\cos\varepsilon_1\cos\varepsilon_2) - 4\cos\varepsilon_2\right]. \quad (32)$$

La configuration de plus basse énergie est obtenue pour une fermeture des moments (+) des deuxièmes voisins si les moments (+) des premiers voisins se sont fermés, ou une ouverture si les premiers voisins se sont ouverts. Alors :

$$E_{ex} = 2\,|J|\,S(S+1)\,[-\sin\varepsilon_1\sin\varepsilon_2(2-\sqrt{2}) - 4\cos\varepsilon_2]. \quad (33)$$

On minimise par rapport à ε_2

$$\frac{dE_{ex}}{d\varepsilon_2} = 2\,|J|\,S(S+1)\,[-\sin\varepsilon_1\cos\varepsilon_2(2-\sqrt{2}) + 4\sin\varepsilon_1] = 0 \quad (34)$$

d'où

$$\mathrm{tg}\,\varepsilon_2 = \frac{2-\sqrt{2}}{4}\sin\varepsilon_2. \quad (35)$$

L'énergie d'échange pour l'ensemble des moments perturbés s'écrit :

$$\begin{aligned} E_{ex}\ \mathrm{tot} &= 12\,|J'|\,S(S+1)\cos 2\varepsilon_1 - 56\,|J|\,S(S+1)\cos\varepsilon_1 \\ &- 16\,|J|\,S(S+1)\,(\sqrt{2}\sin^2\varepsilon_1+\cos^2\varepsilon_1) \\ &- 16\,|J|\,S(S+1)\left(1-\frac{\sqrt{2}}{2}\right)\sin\varepsilon_1\sin\varepsilon_2 \\ &- 16\,|J|\,S(S+1)\cos\varepsilon_2. \end{aligned} \quad (36)$$

On remplace ε_2 par sa valeur en fonction de ε_1 et on minimise par rapport à ε_1. Il vient

$$\begin{aligned} \frac{dE_{ex}\ \mathrm{tot}}{d\varepsilon_1} &= -[48\,|J'| + 32\,|J|\,(\sqrt{2}-1)] \\ &S(S+1)\sin\varepsilon_1\cos\varepsilon_1 + 56\,|J|\,S(S+1)\sin\varepsilon_1 \\ &- 32\,|J|\,S(S+1)\frac{\left(\frac{2-\sqrt{2}}{4}\right)^2\sin\varepsilon_1\cos\varepsilon_1}{\left[1+\left(\frac{2-\sqrt{2}}{4}\right)^2\sin^2\varepsilon_1\right]^{1/2}} \\ &- \frac{16\,|J|\,S(S+1)\left(\frac{2-\sqrt{2}}{4}\right)^2\sin\varepsilon_1\cos\varepsilon_1}{\left[1-\left(\frac{2-\sqrt{2}}{4}\right)^2\sin^2\varepsilon_1\right]^{3/2}} = 0. \end{aligned} \quad (37)$$

Nous trouvons d'abord les solutions $\varepsilon_1 = k\pi$.
L'autre solution est donnée par :

$$\cos\varepsilon_1\left\{48\left|\frac{J'}{J}\right| + 32(\sqrt{2}-1) + \frac{16\left(\frac{2-\sqrt{2}}{4}\right)^2}{\left[1+\left(\frac{2-\sqrt{2}}{4}\right)^2\sin^2\varepsilon_1\right]^{1/2}}\left[2+\frac{1}{1+\left(\frac{2-\sqrt{2}}{4}\right)^2\sin^2\varepsilon_1}\right]\right\} = 56. \quad (38)$$

En négligeant $[(2-\sqrt{2})/4]^2\sin^2\varepsilon_1$ devant 1, on a une solution très bien approchée en $\cos\varepsilon_1$

$$\cos\varepsilon_1 \simeq \frac{1}{(6/7)\,|J'/J| + 0{,}255}. \quad (39)$$

Cette solution existe $|J'/J| > 0{,}87$.
On vérifie facilement que la solution stable est

$$\varepsilon_1 = 0, \quad \text{si} \quad |J'/J| \leqslant 0{,}87$$

$$\varepsilon_1 = \mathrm{Arc}\cos\left(\frac{1}{\frac{6}{7}|J'/J| + 0{,}255}\right), \quad \text{si} \quad J/J' > 0{,}87.$$

Le calcul s'effectue de la même manière dans les autres cas.

Manuscrit reçu le 11 janvier 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] De Gennes (P. G.) et Friedel (J.), *J. Phys. Chem. Solids*, 1958, **4**, 71.
[2] Beal (M. T.), *J. Phys. Chem. Solids* (1960, **15**, 72).
[3] Mott (N. F.) et Jones (H.), Theory of the properties of metals and alloys, Cambridge, University Press, 1936.
[4] Hozelitz (K.), Ferromagnetic properties of metals and alloys, Oxford, Clarendon Press, 1952.
[5] Friedel (J.), Leman (G.) et Olszewski (S.) *J. Appl. Phys.*, 1961, **32**, 325.
[6] Bacon (G. E.), Dunmur (I. W.), Smith (J. H.) et Street (R.), *Proc. Roy. Soc.*, A 1957, **241**, 228.
[7] Rocher (Y. A.) et Friedel (J.), *J. Phys. Chem. Solids*, 1961, **18**, 196.
[8] De Gennes (P. G.), *Phys. Rev.*, 1960, **118**, 141.
[9] Lee (J. A.), Meadon (G. T.), Hall (R. O. A.) et King (E.), mémoire 4, Conf. Int. Pu, Grenoble, 1960.
[10] Sandenaw (T. A.), *J. Phys. Chem. Solids* (à paraître).
[11] Arrott (A.) et Sato (H.), *Phys. Rev.*, 1959, **114**, 1420.

DÉTERMINATION THÉORIQUE ET EXPÉRIMENTALE DU RAYONNEMENT DE FREINAGE ÉMIS PAR LES β DU PHOSPHORE 32 DANS L'OR

Par R. QUIVY (*) et J. FRANEAU (**),

Résumé. — Les formules théoriques, relativistes et non relativistes, donnant la section efficace d'émission de rayonnement de freinage, pour des électrons monoénergétiques, sont appliquées à la prédétermination du rayonnement émis lors du freinage des β du phosphore 32 dans l'or.

Pour étudier expérimentalement ce rayonnement de freinage, on établit une méthode d'interprétation des spectres relevés par un compteur à scintillations.

L'expérience montre que les prévisions théoriques se vérifient de façon satisfaisante pour des radiateurs de faible épaisseur et que, dans le cas de radiateur épais, le rayonnement de faible énergie augmente considérablement d'intensité.

On peut en déduire quelques considérations relatives à l'utilisation pratique du rayonnement de freinage.

Abstract. — Relativistic and non relativistic theoretical formulas, giving the bremsstrahlung cross-section for monoenergetic electrons, are used to compute the bremsstrahlung produced by P 32 β rays in gold.

In order to study experimentally this radiation, a method is proposed to interpret experimental spectra obtained with a scintillation counter.

Experiments agree satisfactorily with theoretical predictions for thin targets. With thick targets, the intensity of the low-energy radiation increases considerably.

The practical use of this bremsstrahlung is discussed.

I. **Introduction.** — On sait qu'un électron accéléré par le champ d'un noyau dans le voisinage duquel il passe, émet de l'énergie sous forme de photons au détriment de son énergie cinétique. Ce rayonnement de freinage (bremsstrahlung) a été l'objet de nombreuses études théoriques.

Nous nous sommes proposé d'étudier expérimentalement le rayonnement de freinage émis par les électrons d'une source β à spectre continu, lors de leur ralentissement dans un radiateur, en vue de comparer nos résultats aux prévisions théoriques et de voir dans quelle mesure la théorie permet de prédéterminer le spectre émis.

II. **Considérations théoriques.** — Comme émetteur β, nous avons utilisé le phosphore 32. Le fait que l'énergie des β varie de façon continue jusque 1,7 MeV nous place dans une situation assez délicate au point de vue théorique. En effet, la théorie ne donne la probabilité d'émission d'un photon $h\nu$, sous une forme assez simple pour se prêter au calcul, que dans le cas d'énergies nettement relativistes ou dans le cas d'énergies nettement non relativistes. Pour les énergies relativistes, nous avons utilisé la relation de Bethe et Heitler [1], dérivée du travail de Sauter [2], et donnant la section efficace différentielle :

$$d\sigma(E_0, \nu) = 4\frac{Z^2}{137}\left(\frac{e^2}{mc^2}\right)^2\frac{d\nu}{\nu}\cdot\left[1+\left(\frac{E}{E_0}\right)^2-\frac{2}{3}\frac{E}{E_0}\right] \times\left(\log\frac{2E_0E}{mc^2.h\nu}-\frac{1}{2}\right) \quad (1)$$

avec : E_0 : énergie totale initiale de l'électron incident,

Z : nombre atomique du radiateur,

E : énergie totale résiduelle de l'électron après émission du photon $h\nu$: $E = E_0 - h\nu$.

Pour les énergies non relativistes, nous avons appliqué la formule de Kirkpatrick et Wiedmann [3] :

$$I_\theta = I_x \sin^2\theta + I_y(1 + \cos^2\theta) \quad (2)$$

qui donne l'intensité totale de rayonnement de freinage émis dans la direction θ (*fig.* 1) en fonction des composantes $I_x(\nu, E_0)$ et $I_y(\nu, E_0)$. Ces deux composantes sont d'expression très compliquée mais Kirpatrick et Wiedmann les ont tabulées en y faisant intervenir des variables réduites qui en facilitent l'application ; le calcul numérique des composantes I_x et I_y a conduit les auteurs précités à faire des hypothèses qui ne sont correctes que pour des énergies E_0 non relativistes.

(*) Chercheur au Centre de Mons de l'Institut Interuniversitaire des Sciences Nucléaires (Belgique).

(**) Professeur à la Faculté Polytechnique de Mons (Belgique).

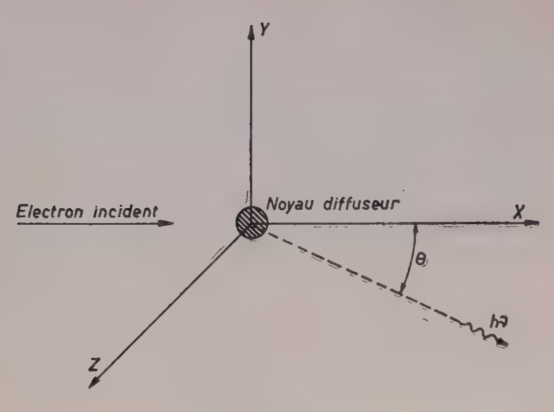


Fig. 1.

D'autre part, nous avons comparé, dans le domaine non relativiste, la relation de Kirkpatrick et Wiedmann à celle de Schiff [4], dans la forme donnée par Kock et Motz [5].

$$\mathrm{d}\sigma(E_0, \nu, \theta) = 4\frac{Z^2}{137}\left(\frac{e^2}{mc^2}\right)^2 \cdot \frac{\mathrm{d}\nu}{\nu}\left\{\frac{16y^2 E}{(y^2+1)^4 E_0} - \frac{(E_0+E)^2}{(y^2+1)^2 E_0^2} + \left[\frac{E^2+E_0^2}{(y^2+1)^2 E_0^2} - \frac{4y^2 E}{(y^2+1)^4 E_0}\right] \times \log . M(y)\right\} y . \mathrm{d}y \quad (3)$$

avec : $$y = E_0\,\theta$$

et

$$\frac{1}{M(y)} = \left(\frac{h\nu}{2E_0 E}\right)^2 + \left(\frac{Z^{1/3}}{111(y^2+1)}\right)^2.$$

Cette dernière relation (3) intégrée à tout l'angle solide est en bon accord avec la relation (2). Nous avons utilisé la relation (2) parce qu'elle est d'une application beaucoup plus aisée à un cas concret. Il nous reste à déterminer quelle partie du spectre β doit être considérée comme non relativiste. A cette fin, posons :

$$\Phi(E_0, \nu) = h\nu\frac{\mathrm{d}\sigma(E_0, \nu)}{\mathrm{d}\nu}$$

et traçons les courbes donnant $\Phi(E_0, \nu)$ en fonction de ν pour des valeurs croissantes de E_0, par application des formules (1) et (2). On voit sur la figure 2 que pour $E_0 = 1{,}5\ m_0c^2$, les courbes (1) et (2) sont assez voisines. On appliquera donc la formule (2) pour $m_0c^2 < E_0 \leqslant 1{,}5\ m_0c^2$ et la formule (1) pour $E_0 > 1{,}5\ m_0c^2$; la valeur

$$E_0 = 1{,}5\ m_0c^2$$

correspond à une énergie cinétique de $m_0c^2/2$ (c'est-à-dire 256 keV), ce qui est bien la limite généralement admise du domaine non relativiste.

III. Mesures expérimentales. — 1. Dispositif de mesure. — La figure 3 schématise le dispositif expérimental. La source de ^{32}P, sous forme de phosphate de sodium, est déposée par évaporation dans un petit cylindre creux en aluminium. Ce dispositif donne un faisceau β dont le demi-angle d'ouverture est inférieur à 8°. La nature et les dimensions du support de source et du collimateur

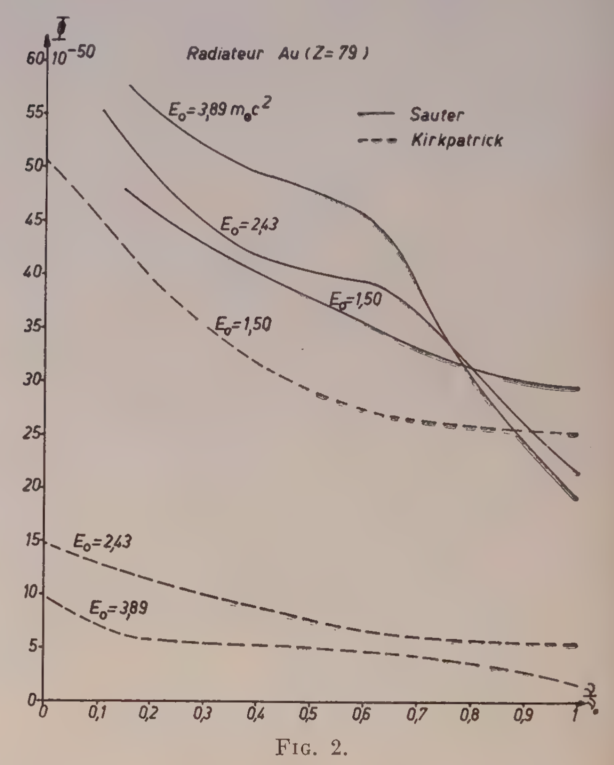


Fig. 2.

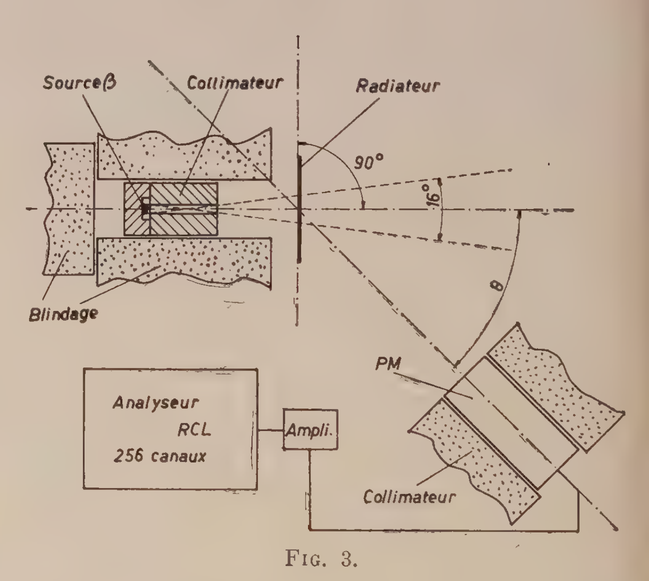


Fig. 3.

ont été choisies de façon à rendre aussi faible que possible le rayonnement de freinage émis par les β absorbés.

La feuille de métal servant de radiateur est maintenue dans le faisceau β, juste à la sortie du collimateur. Le dispositif source-collimateur et le détecteur sont entourés d'un blindage de plomb de 10 cm

d'épaisseur afin de réduire au minimum la détection des photons provenant directement de la source et du collimateur. Le système de détection est constitué d'un scintillateur en iodure de sodium.

2. Corrections et interprétation du spectre relevé. — La détection de photons monoénergétiques au moyen d'un scintillateur ne présente guère de difficulté ; en effet, l'examen de la raie photoélectrique fournit les renseignements nécessaires à des mesures quantitatives, connaissant la géométrie du montage, les dimensions et les coefficients d'absorption du scintillateur. Appelons :

N_0 : le nombre de photons d'énergie $h\nu$ incidents au scintillateur et supposés être de même direction ;

N_{ph} : le nombre de coups enregistrés dans la raie photoélectrique ;

μ_t : le coefficient total d'absorption du matériau constituant le scintillateur (effet photoélectrique + effet Compton + création de paires), pour les photons d'énergie $h\nu$;

μ_{ph} : le coefficient d'*absorption totale de l'énergie* $h\nu$ par le scintillateur ;

l : la longueur du scintillateur (parallèlement au flux de photons incidents).

On établit facilement :

$$\mathrm{d}N_{ph} = -(\mu_{ph}/\mu_t)\,.\,\mathrm{d}N = \mu_{ph}\,.\,N_0\,.\,\mathrm{e}^{-\mu_t . x}$$

$$N_{ph} = (\mu_{ph}/\mu_t)\,.\,(1 - \mathrm{e}^{-\mu_t l})\,.\,N_0.$$

On pose :

$$1/F_{ph} = (\mu_{ph}/\mu_t)\,.\,(1 - \mathrm{e}^{-\mu_t l})$$

d'où :

$$N_0 = F_{ph}\,.\,N_{ph}.$$

Il est bien évident que pour appliquer ces relations, il faut disposer des valeurs de μ_t relatives au type de scintillateur utilisé (nature et dimensions géométriques).

A partir des courbes du N. B. S. [6], nous avons tracé la courbe de la figure 4 donnant F_{ph} en fonction de l'énergie $h\nu$ des photons incidents.

Cependant, lors de la détection par scintillateur d'un flux de photons monoénergétiques, il y a, en deçà de la raie photoélectrique, un spectre continu dû essentiellement à l'effet Compton : d'une part, effet Compton à l'intérieur du scintillateur avec absorption par celui-ci de l'énergie de l'électron Compton et échappement du photon diffusé ; d'autre part, effet Compton à l'extérieur du scintillateur avec détection du photon diffusé mais non de l'électron Compton.

Dans le cas de photons d'énergies différentes, aux impulsions données par absorption totale d'une même énergie, se superposeront celles provenant de l'effet Compton des photons d'énergie plus élevée.

On pourrait espérer prédéterminer théoriquement la contribution, à la formation du spectre

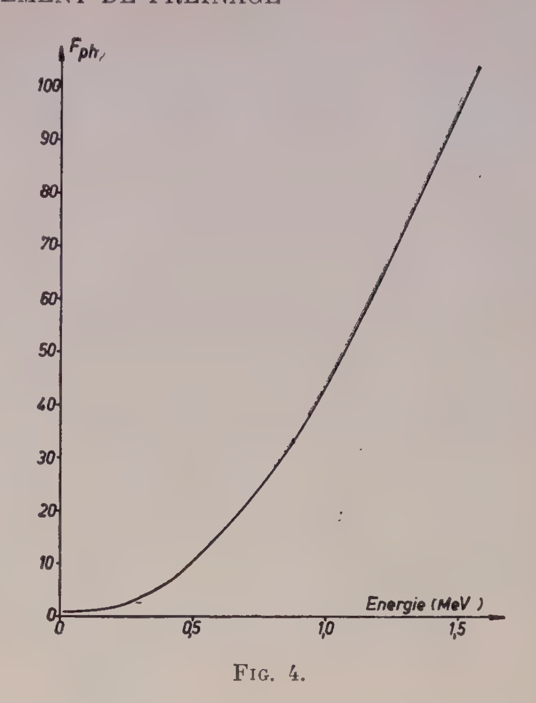


Fig. 4.

mesuré, des électrons Compton créés à l'intérieur du scintillateur. Malheureusement, il est impossible de prévoir l'influence des effets Compton extérieurs au scintillateur. Ceci nous a conduit à procéder de la façon suivante.

Nous avons déterminé expérimentalement la réponse du scintillateur pour des γ monoénergétiques de différentes énergies et nous avons interpolé pour prédéterminer le spectre donné par des γ d'énergie intermédiaire.

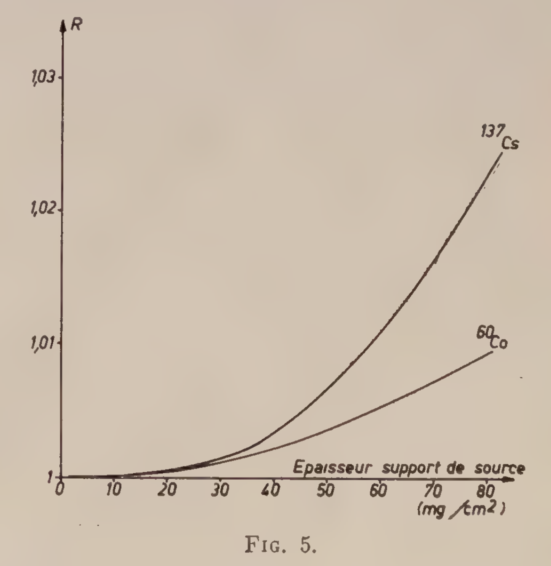


Fig. 5.

Pour faire ces déterminations, nous devions disposer de sources γ aussi monoénergétiques que possible. Il fallait donc que les influences de l'épaisseur de la source et du support de source soient

négligeables. Les hautes activités spécifiques que l'on peut facilement obtenir permettent de résoudre le problème en ce qui concerne l'épaisseur de la source. D'autre part, étant donné la distance qui sépare la source du scintillateur, on devait s'attendre à ce que seule, la partie du spectre relevé correspondant à la diffusion γ à 180° soit affectée par l'épaisseur du support de source, ce qui a été confirmé par l'expérience. Nous avons donc relevé des spectres, avec une même source γ, pour des épaisseurs de support de source croissantes. De façon à pouvoir comparer nos résultats, nous avons calculé le rapport R de l'aire de la raie de diffusion vers l'arrière à l'aire de la raie photoélectrique, normalisé à l'unité pour une épaisseur de support de source de 1 mg/cm². La figure 5 donne les courbes de R en fonction de l'épaisseur du support de source pour le cobalt 60 et le césium 137. On voit, à partir de ces résultats, que l'emploi de support de source dont l'épaisseur est de l'ordre de 5 mgr/cm² évitera toute déformation de spectre due à la rétrodiffusion, le scintillateur étant placé à une distance de la source grande par rapport au diamètre du scintillateur.

Pour déterminer le spectre Compton de γ monoénergétiques, nous avons utilisé le mercure 203, le chrome 51, l'or 198, l'iode 128 et le césium 137, sous forme de source d'épaisseur négligeable, déposée par évaporation sur film de formvar de 5 mg/cm².

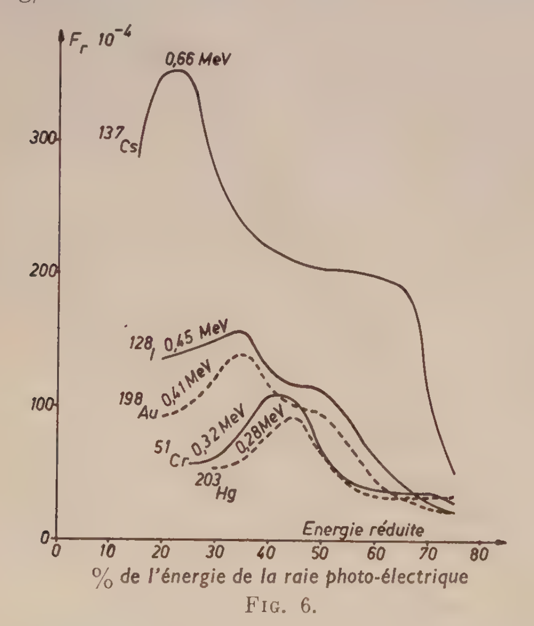


Fig. 6.

Les différents spectres relevés ne sont pas semblables, ce qui nous a amenés à les normaliser en fonction d'une énergie réduite obtenue en divisant les abscisses d'un même spectre par l'énergie de la raie photoélectrique.

La figure 6 donne ces spectres ; en abscisse, on a porté l'énergie réduite, la position de la raie photoélectrique correspondant donc à 100 % ; en ordonnée, le facteur de réponse F_r de notre dispositif, c'est-à-dire, les ordonnées du spectre relevé divisées par l'aire de la raie photoélectrique. Il faut signaler que, une fois les spectres normalisés, les raies photoélectriques coïncident pratiquement.

A partir de la figure 6, on peut tracer un réseau de courbes donnant le facteur de réponse F_r en fonction de l'énergie du photon incident.

L'interpolation graphique permet de compléter le réseau de la figure 6 et finalement de tracer l'abaque de la figure 7 où nous portons le facteur

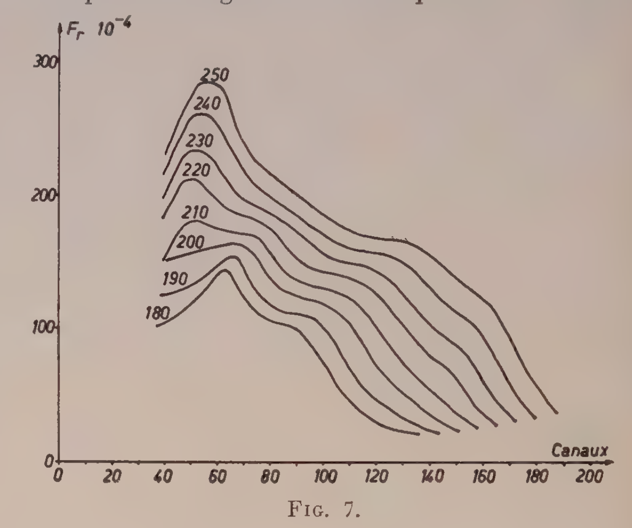


Fig. 7.

de réponse F_r en fonction de la hauteur d'impulsion (exprimée en nombre de canaux de notre analyseur R. C. L. à 256 canaux) pour une position déterminée de la raie photoélectrique notée en paramètre sur les courbes.

En outre, pour étudier un spectre continu, nous devrons le découper en tranches d'égale largeur. Or, la largeur de raie photoélectrique variant avec l'énergie, il est bien évident qu'une tranche de largeur constante axée sur le sommet d'une raie

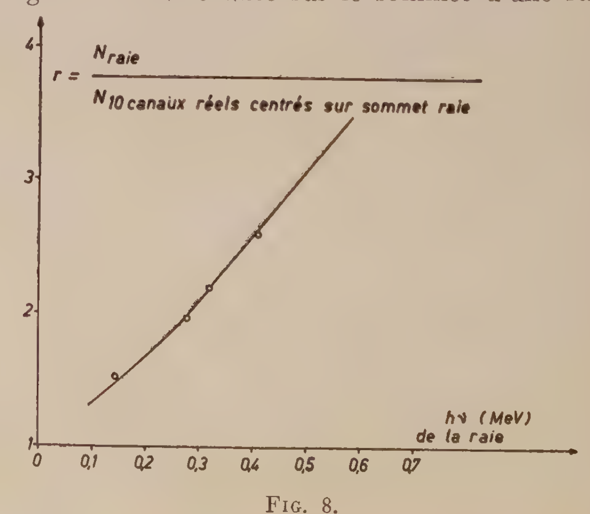


Fig. 8.

photoélectrique n'embrassera pas la même portion relative de celle-ci selon qu'elle est à basse ou à haute énergie, ce qui nécessite l'apparition d'un nouveau facteur de correction r (*fig.* 8) :

$$r = \frac{N_{\text{raie}}}{N_{\text{dans la tranche de largeur } \Delta E \text{ centrée sur la raie}}}.$$

D'où :

$$N_{\Delta E} = N_{\text{raie}}/r. \tag{4}$$

Un exemple illustrera la façon de procéder pour corriger un spectre relevé.

Considérons un spectre relevé quelconque (*fig.* 9).

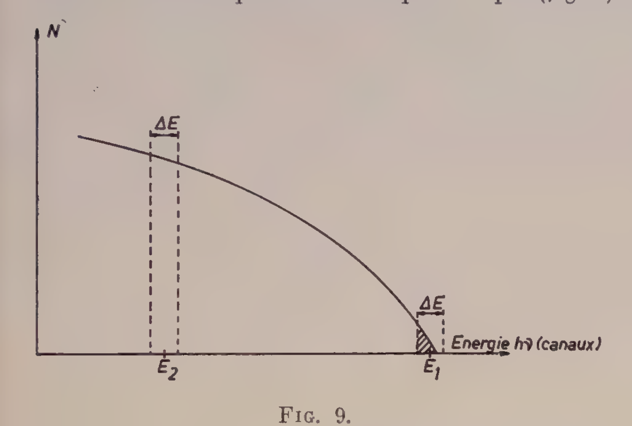


FIG. 9.

On divise le spectre en tranches de largeur constante ΔE (dans notre cas, $\Delta E = 4$ % de l'échelle totale d'énergie de l'analyseur). Nous pouvons admettre que la dernière tranche ΔE, centrée sur E_1 est due uniquement à l'effet photoélectrique ; soit N_1 le nombre de coups enregistrés dans cette bande.

La figure 4 nous donne $F_{\text{ph}} = F_1$, pour $h\nu = E_1$. Il suffit donc de multiplier le nombre de coups N_1 de la tranche E_1 par F_1 pour obtenir le nombre de photons incidents d'énergie comprise entre

$$E_1 - (\Delta E/2) \text{ et } E_1 + (\Delta E/2).$$

A ces N_1 coups de la bande ΔE centrée sur E_1, correspond un certain nombre de coups dans la bande ΔE centrée sur E_2 ($E_2 < E_1$). A la figure 7, le point d'abscisse E_2 situé sur la courbe portant en paramètre E_1, a comme ordonnée $F_{r1.2}$; d'autre part, la figure 8 donne $r = r_1$ pour $E = E_1$. La contribution de la bande ΔE centrée sur E_1 est donc :

$$N_1 . F_{r1.2}/r_1 \text{ en vertu de (4).}$$

Il faudra donc soustraire cette contribution du nombre de coups N_2, enregistrés dans la bande ΔE centrée sur E_2. Il suffira d'appliquer le même calcul aux tranches successives d'énergie décroissante à partir de l'énergie maximum E_1, chaque tranche ayant été au préalable corrigée de la contribution des photons d'énergie supérieure à son énergie moyenne.

A la figure 10, nous avons représenté un spectre relevé et le même spectre corrigé de la réponse du scintillateur et des phénomènes parasites.

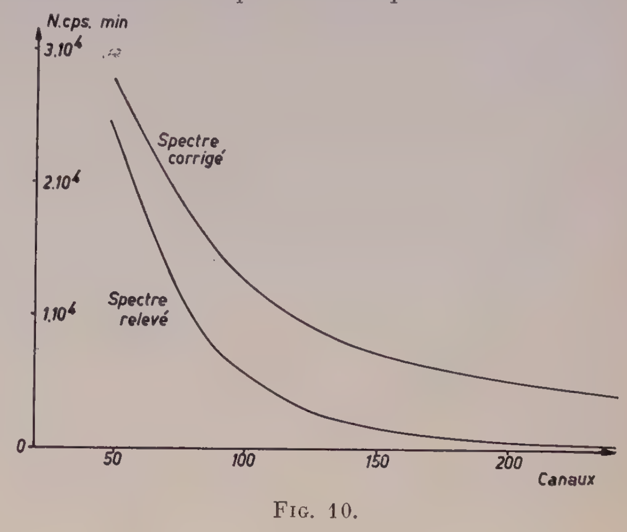


FIG. 10.

La méthode d'interprétation que nous avons employée tient compte de toutes les interactions de photons avec le dispositif expérimental (support de source, collimateur, air, blindage, coiffe de scintillateur, etc...).

3. MESURE DU RAYONNEMENT DE FREINAGE. — Grâce au dispositif de la figure 3, nous avons étudié le rayonnement de freinage émis par les β du ^{32}P dans l'or en fonction de θ.

Ces mesures ont été faite pour θ = 30°, 45°, 60°, 75°, notre dispositif expérimental ne nous permettant pas d'explorer le rayonnement sous des angles supérieurs à 75°.

Nous avons utilisé comme radiateur, des feuilles d'or de 19, 31, 39, 44, 63, 88, 165, 455, 744 et 918 mg/cm² d'épaisseur.

Tous les spectres relevés ont été corrigés de la réponse du dispositif expérimental, de l'absorption dans le radiateur et de la décroissance de la source β

IV. **Comparaison et discussion des résultats.** — 1. PRÉDÉTERMINATION DU SPECTRE THÉORIQUE DE RAYONNEMENT DE FREINAGE. — L'épaisseur de la source de ^{32}P utilisée provoque une importante déformation du spectre β. Aussi, nous avons dû relever, au spectrographe β, le spectre β réellement émis par notre source. Il est représenté à la figure 11.

Nous avons appliqué à ce spectre β les équations de Sauter et de Kirkpatrick et Wiedmann selon le principe que nous avons exposé plus haut, ce qui nous donne le spectre théorique du rayonnement de freinage relatif à une géométrie de 4π (*fig.* 12).

2. COMPARAISON AVEC LES COURBES EXPÉRIMENTALES. — Nous avons intégré graphiquement

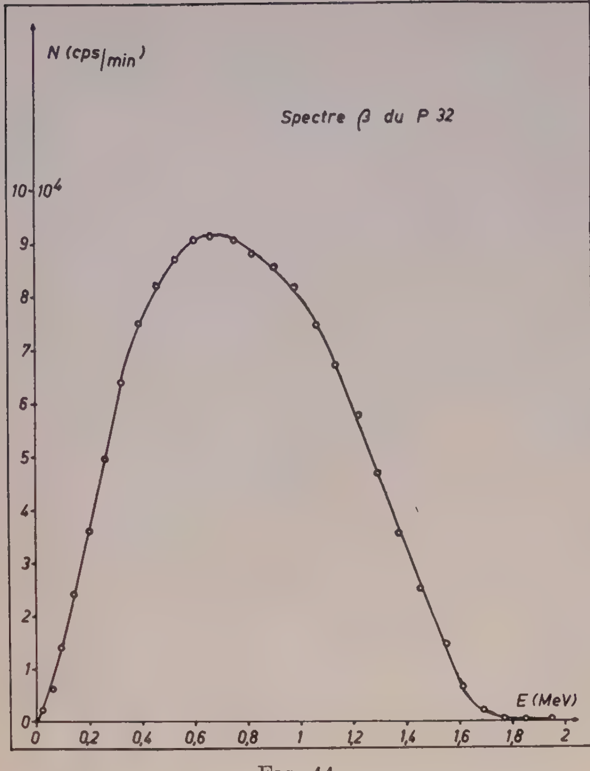


Fig. 11.

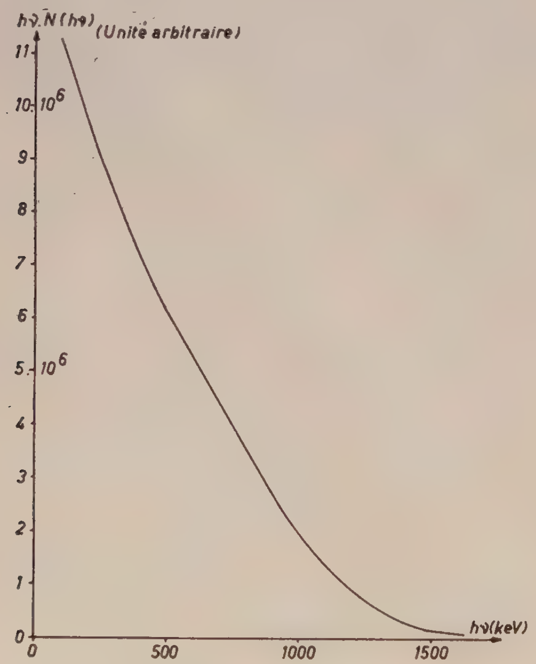


Fig. 12. — Spectre théorique du rayonnement de freinage émis par les β du ³²P.

nos résultats expérimentaux ; aux figures 13*a*, 13*b* et 13*c*, nous portons

$$\int_{\theta=22°30'}^{\theta=82°30'} h\nu . N . \mathrm{d}\Omega,$$

en fonction de l'énergie.

Sur chacun de ces trois graphiques, nous avons tracé la courbe théorique en la normalisant avec la courbe expérimentale pour une énergie correspondant au 140ᵉ canal de l'analyseur.

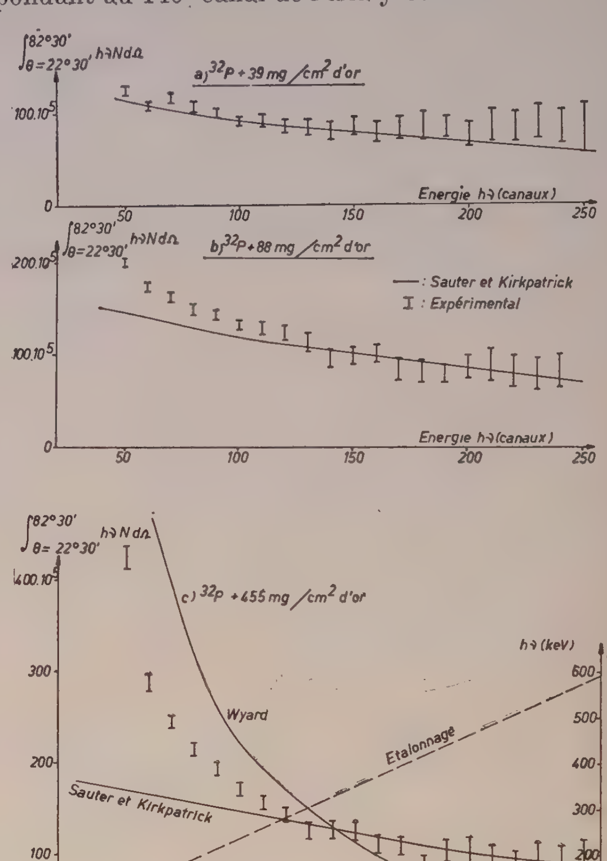


Fig. 13.

Dans le cas des faibles épaisseurs de radiateur, on voit que les courbes expérimentales et théoriques ont bien la même forme. En outre, l'examen des courbes montre que l'augmentation de l'épaisseur du radiateur ne favorise que très peu l'émission de rayonnement de freinage d'énergie assez élevée, celle-ci ayant surtout lieu dans les toutes premières tranches du matériau (*fig.* 14, 15 et 16). Le décollement, aux basses énergies, de la courbe expérimentale par rapport à la courbe théorique est d'autant plus important que le radiateur est épais, ce qui était prévisible puisque nos équations théoriques de départ sont relatives à une seule interaction par électron, donc rigoureusement applicables dans le cas d'un radiateur d'épaisseur monoatomique seulement. En effet, au fur et à mesure que l'électron ralentit, il émet des photons d'énergie de plus en plus faible, ce qui enrichit fortement le rayonnement mou du spectre expérimental d'un radiateur

épais par rapport à la prédétermination relative à une seule interaction par électron.

Pour vérifier la théorie, il était donc nécessaire d'utiliser des radiateurs aussi minces que possible tout en ayant un nombre de photons suffisant.

Wyard [7] et plus récemment Goodrich et coll. [8] ont appliqué la théorie de Sauter en l'étendant à toute la trajectoire de la particule β et ont établi :

$$I(h\nu) = (E_0 - m_0 c^2)\left[4\left(1 - \frac{h\nu}{E_0 - m_0 c^2}\right) - 3\frac{h\nu}{E_0 - m_0 c^2} \times \mathrm{Log}\frac{E_0 - m_0 c^2}{h\nu}\right]$$

où $I(h\nu)$ représente l'intensité du rayonnement de freinage de fréquence ν émis tout le long de la trajectoire d'un électron d'énergie totale initiale E_0.

Nous avons intégré cette formule de Wyard à tout le spectre β de notre source de ^{32}P (*fig.* 13*c*).

On voit que le spectre prédéterminé par la formule de Wyard présente une grande divergence par rapport au spectre expérimental. Une augmentation de l'épaisseur de radiateur jusqu'à une valeur proche du parcours maximum des β entraînera évidemment une augmentation du rayonnement mou mais par contre le rayonnement dur ne sera que très peu affecté ; en effet, il faut remarquer que l'épaisseur de radiateur de 455 mg/cm² (*fig.* 13*c*) correspond à 60 % environ du parcours maximum des β du phosphore 32. D'autre part, il ne faut pas oublier que, à cause de la rétrodiffusion, le spectre β est fortement modifié, au fur et à mesure de la pénétration des électrons dans le radiateur, ce qui

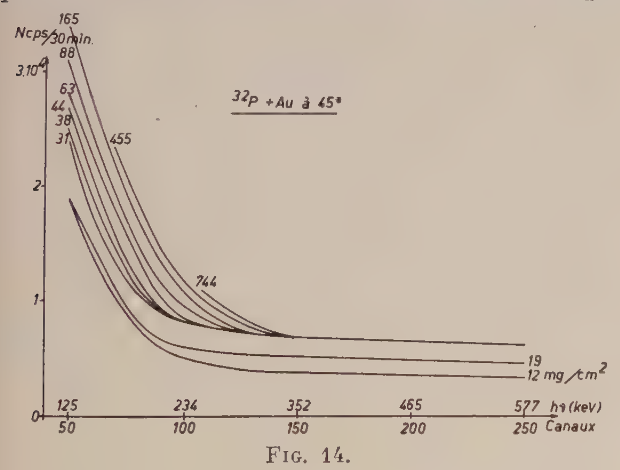


FIG. 14.

entraîne certaines réserves au sujet de l'application de la formule de Wyard au cas où le radiateur n'entoure pas complètement la source β.

Toutefois, nos mesures expérimentales ont été limitées à des valeurs de θ comprises entre 30° et 75°, pour des raisons d'encombrement de blindage et de précision statistique. Le spectre de rayonnement de freinage émis dans tout l'angle solide (θ variant de 0° à 180°) sera différent du nôtre. Cependant, le rayonnement émis sous des angles θ grands est riche en faibles énergies, mais son intensité diminue rapidement au fur et à mesure que θ croît, de sorte que le spectre émis dans l'angle solide de 4π ne sera pas très différent de celui que nous avons relevé [9].

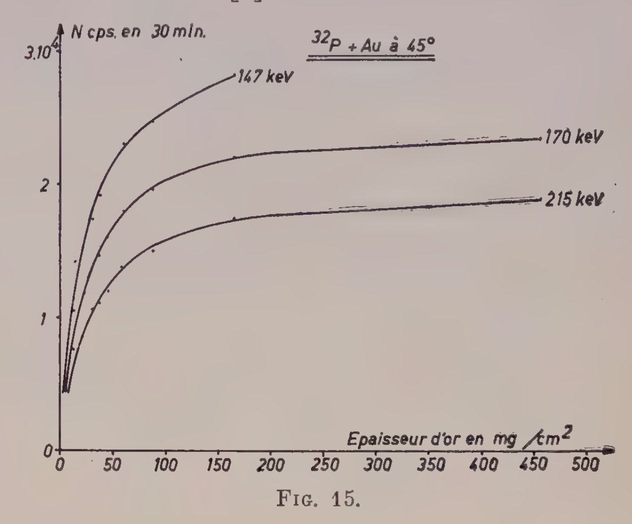


FIG. 15.

En conclusion, on peut dire que l'application de l'équation de Kirkaptrick pour $E_0 < 1,5\ m_0c^2$ et de l'équation de Sauter pour $E_0 > 1,5\ m_0c^2$, étendue à un spectre continu β permet de prédéterminer le spectre de rayonnement de freinage émis dans un radiateur mince (d'épaisseur de l'ordre de 1/20ᵉ du parcours maximum des β les plus énergétiques) avec une précision meilleure que 5 %.

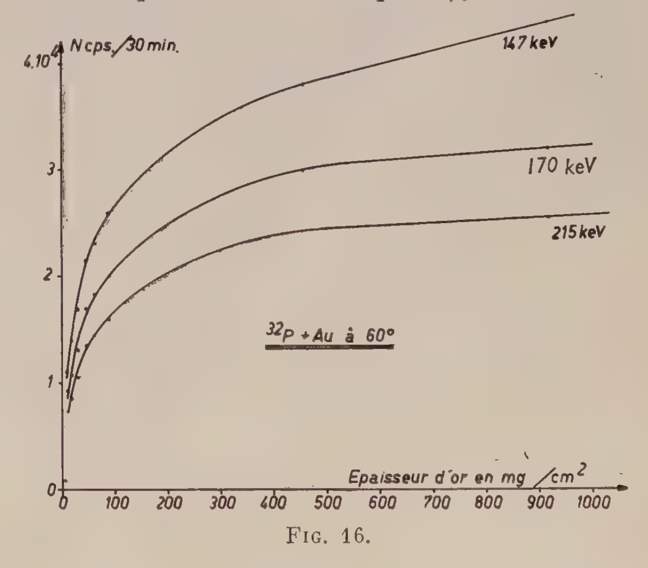


FIG. 16.

Pour des épaisseurs de radiateur plus importantes, le spectre s'enrichit fortement en rayonnement mou, alors que le rayonnement dur n'augmente que très faiblement.

V. **Possibilités d'utilisation du rayonnement de freinage.** — Si, du point de vue théorique, il est

intéressant d'étudier le rayonnement de freinage *émis* par des β dans un radiateur, du point de vue pratique, il importe surtout de connaître le spectre de rayonnement émergeant du radiateur.

Les figures 17, 18 et 19 donnent quelques spectres émergeant du radiateur. De l'examen de ces résultats, on peut conclure que, pour une épaisseur faible de radiateur (39 mg/cm²), le rayonnement mou est favorisé par rapport au rayonnement dur au fur et à mesure que l'angle θ augmente (*fig.* 17). Une faible augmentation de l'épaisseur de radiateur modifie peu les formes de spectre, si ce n'est un léger accroissement du rayonnement mou pour toutes les valeurs de θ (*fig.* 18). Dans le cas d'une épaisseur de radiateur importante (*fig.* 19), pour θ = 45°, le spectre garde la même forme que pour des épaisseurs plus faibles, avec renforcement du rayonnement mou où apparaît déjà un maximum ; pour θ = 60° et θ = 75°, le maximum est beaucoup plus accusé et tend à se déplacer dans le sens des énergies croissantes.

L'évolution de la forme des spectres en fonction de θ et de l'épaisseur de radiateur se justifie par la variation de l'émission de rayonnement de freinage et de l'importance relative de son absorption dans le radiateur. Pour un radiateur d'épaisseur mince croissante, la production de rayonnement dur varie peu et il est faiblement absorbé ; tandis que l'émission de rayonnement mou reste importante pour chaque tranche du radiateur (sensiblement proportionnelle à l'épaisseur du radiateur) mais la self-absorption peut devenir prédominante pour des épaisseurs assez grandes et pour des énergies assez faibles.

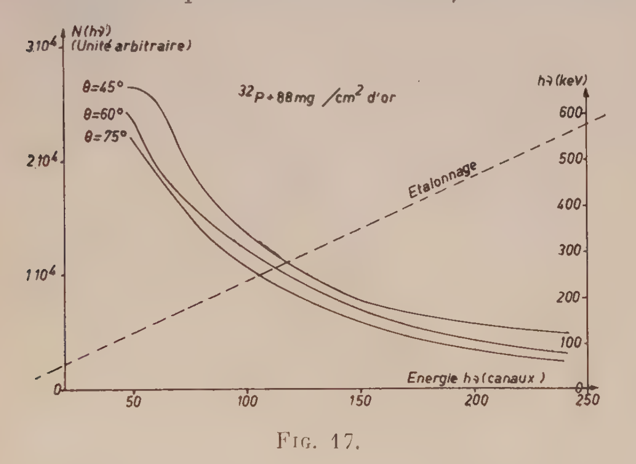


Fig. 17.

Fig. 18.

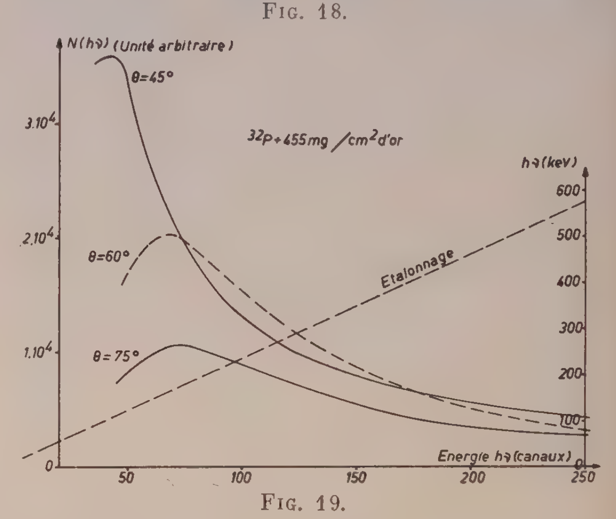


Fig. 19.

Le maximum des spectres de radiateurs épais se situe aux environs de 150 — 200 keV, domaine intermédiaire entre les X et les γ, ce qui montre l'intérêt pratique que présente l'utilisation du rayonnement de freinage [10].

Nous tenons à remercier M. Marc L'Allemand pour l'aide qu'il nous a apportée lors des mesures expérimentales et des longs calculs nécessités par notre travail.

Manuscrit reçu le 23 janvier 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Segre (E.), *Exper. Nuclear Physics*, 1953, **1**, 260.
[2] Sauter (F.), Uber die Bremsstrahlung schneller Elecktronen. *Ann. Physik*, 1934, 5 Folge, Band **20**, 404-412.
[3] Kirpatrick (P.) et Wiedmann (L.), Theoretical continuous X-ray energy and polarization. *Phys. Rev.*, 1945, **67**, n° 11 et **12**, 321-339.
[4] Schiff (L. I.), Energy-angle distribution of thin target bremsstrahlung. *Phys. Rev.*, 1951, **83**, n° 2, 252-253.
[5] Kock (H. W.) et Motz (J. W.), Bremsstrahlung cross-section formulas and related data. *Rev. Mod. Physics*, 1959, **31**, n° 4, 920-955.
[6] *Nat. Bur. Stand.* Data 1954, 1003.
[7] Wyard (J. S. J.), Intensity distribution of bremsstrahlung from beta-Rays. *Proc. London Phys. Soc.*, 1952, **65**, 377-378.
[8] Goodrich (L.), Leviger (J. S.) et Payne (W.), Bremsstrahlung from ³²P betas. *Phys. Rev.*, 1953, **91**, n° 5, 1225-1234.
[9] Buechner (N. W.), Van de Graaf (R. J.), Burrill (E. A.) et Sperduto (A.), Thick-target X ray production in the range from 1 250 to 2 350 kilovolts. *Phys. Rev.*, 1948, **74**, n° 10, 1348-1352.
[10] Jodogne (J. C.), Étude et applications du rayonnement de freinage. [Travail de fin d'études à la Faculté Polytechnique de Mons (non publié), 1959.]

VITESSE DE PROPAGATION DES ONDES THERMOSTATIQUES DANS LES LIQUIDES

Par A. CARRELLI et M. MARINARO,
Institut de Physique Expérimentale à Naples.

Résumé. — Dans ce travail on recherche les conditions qui permettent de mettre en évidence un paramètre, plus proprement une vitesse de propagation trouvée par Lucas dans les liquides.

On propose une nouvelle méthode pour sa mesure, qui permet son évaluation pour tous les liquides et on rapporte les résultats obtenus pour deux liquides.

Les différences que l'on remarque entre cette vitesse et celle du son peuvent être attribuées à des phénomènes de dispersion.

Abstract. — In this work we look for the conditions which allows us to establish a parameter and more exactly a velocity which was found by Lucas in liquids.

We propose a new method for this measurement, which allows us to measure this velocity in all liquids and we give the results which we have obtained for two liquids.

The differences which we have noted in this velocity and in that of sound may be attributed to dispersion phenomena.

D'après un raisonnement proposé par Lucas [1], on constate que, sous l'effet de la propagation de la chaleur dans un liquide, il apparaît une force agissant sur un flotteur qui y est plongé. Des mesures expérimentales, faites par Lucas et répétées par A. Carrelli et E. Grossetti [2], ont confirmé l'existence de cette force qui peut, grâce à un raisonnement extrêmement simple, être mise en relation avec une vitesse Φ caractéristique. Si, en effet, nous indiquons respectivement par ΔV, ρ, c le volume, la masse spécifique, la chaleur spécifique d'un liquide, un centimètre cube de celui-ci absorbera, pour une variation ΔT de température, une quantité de chaleur :

$$\Delta Q = \rho c \Delta V \Delta T. \qquad (1)$$

Cette énergie thermique se propage dans une certaine direction z dans le fluide. Or, d'après les principes fondamentaux de la mécanique, on aura une variation ΔG par unité de volume de la quantité de mouvement liée à ce flux d'énergie et l'on peut admettre que :

$$\Delta G = \Delta Q / \Phi \qquad (2)$$

où Φ est une vitesse caractéristique du liquide.

Si cette variation de quantité de mouvement se produit dans un temps Δt une force F, donnée par :

$$F = \frac{1}{\Phi} \frac{1}{\Delta V} \frac{\mathrm{d}Q}{\mathrm{d}t} = \frac{\rho c}{\Phi} \frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}t}$$

agira sur l'unité de volume du fluide.

Selon l'équation de la propagation de la chaleur on peut déterminer la valeur de $\mathrm{d}T/\mathrm{d}t$ quand, par exemple, on suspend un flotteur dans un récipient contenant le liquide étudié et si l'on produit instantanément un refroidissement du liquide de bas en haut. Le calcul montre que le flotteur est soumis à une force $F_{\mathrm{L}}(t)$ normale au fond du flotteur de section S, dirigée vers le bas et dont la valeur, en fonction du temps, est donnée par :

$$F_{\mathrm{L}}(t) = \frac{kS}{\Phi} \frac{\Delta T}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{\rho c}{kt}}\, e^{-z^2 \rho c / 4kt} \qquad (3)$$

où z est la distance entre le flotteur et le fond du récipient et k la conductibilité thermique du liquide.

Un premier point que nous avons voulu fixer dans cette recherche est l'influence de l'épaisseur du fond du flotteur sur la force agissant sur le flotteur lui-même.

Il est évident qu'une force F apparaît, laquelle est due à la quantité de chaleur cédée par la base métallique du flotteur. Puisque le fond est métallique, on peut retenir que cette cession est due a toute la masse de métal ; donc cette quantité de chaleur et conséquemment l'effet, dépendent de la capacité thermique de la masse métallique du récipient.

Si le fond dispose d'une grande quantité de chaleur à transmettre au liquide, c'est-à-dire si $mc = \rho s S$ est très grand, le récipient pratiquement ne perd pas d'énergie et donc le flux de chaleur du récipient au liquide ne peut donner naissance à aucun effet, et la force n'apparaît pas.

Nous avons avant tout cherché à vérifier cette déduction, c'est-à-dire, nous avons cherché à établir que plus ρc est grand, s et S ne subissant aucune modification, plus la valeur de F est petite, c'est-à-dire, il faut prévoir que pour s et S constants (en faisant varier l'épaisseur s d'autres manifestations apparaissent, comme on le verra plus loin), les produits mcF doivent être presque constants.

Voici les résultats obtenus pour $s = 0{,}3$ mm qui comme on peut voir, sont satisfaisants.

MÉTAUX	mc GR. CALORIE	F DYNES	mcF
—	—	—	—
Cuivre	$20{,}4 . 10^{-2}$	1,3	$2{,}6 . 10^{-1}$
Aluminium	$14{,}1 . 10^{-2}$	2,0	$2{,}8 . 10^{-1}$
Argent	$15{,}0 . 10^{-2}$	0,9	$1{,}3 . 10^{-1}$
Or	$17{,}1 . 10^{-2}$	1,6	$2{,}7 . 10^{-1}$

Il est à noter, cependant, que nous avons trouvé que la force apparaît lorsque l'on emploie aussi des fonds non métalliques. Ainsi, avec un fond de celluloïde ou de verre, par exemple, pour $s = 0{,}70$ mm, le produit mcF acquiert la valeur de $77{,}0\ 10^{-2}$ pour le celluloïde et $7{,}7\ 10^{-2}$ pour le verre, c'est-à-dire valeurs qui dans un cas sont notablement plus petites.

Un second point consiste à établir si le polissage du fond du flotteur a une influence sur la force, puisque la force F provient de la surface du fond et cette surface, pour produire l'effet demandé, doit être plane. Dans ce but, nous avons utilisé comme fond des petits disques de verre dépoli ou gravé, et l'on a remarqué que, toutes les autres conditions étant conservées, la force, avec ce fond non dépoli, subit une diminution importante.

On a enfin procédé à l'élaboration d'une nouvelle méthode par la détermination du paramètre Φ qui apparaît dans la seconde relation (2). Le but de cette détermination consiste essentiellement à chercher s'il existe un lien entre ce paramètre et la vitesse V du son dans le liquide à l'étude. (Un calcul très simple démontre plus particulièrement que Φ devrait être égale à $4/3$ V.)

Il est à remarquer que lorsque l'on se sert de la méthode proposée par Lucas, la mesure de la force F est rendue difficile par le fait que l'on a en même temps une variation de la densité du liquide à cause du refroidissement subi par celui-ci ; cette variation de densité entraîne une variation de la poussée d'Archimède et, par conséquent, l'apparition d'une force F_A opposée à F_L, et dont la valeur peut être beaucoup plus grande, rendant impossible la mesure de F dans de nombreux liquides.

On peut surmonter cet inconvénient, en considérant que lorsque l'épaisseur du flotteur est très grande (de l'ordre de 2 à 3 mm) l'effet Lucas, pour les raisons indiquées ci-dessus, disparaît.

Prenons donc, comme sur la figure 1, deux flotteurs constitués par deux cylindres de verre de 5,5 cm de hauteur et de 4 cm de diamètre.

La base de A est formée par un disque de laiton de 0,03 cm d'épaisseur. Celle de B par un disque de 0,3 cm d'épaisseur. Tous deux sont placés dans deux récipients de structure analogue et à la même distance du fond ; lorsqu'on produit un refroidissement, on a sur chacun d'eux une variation de poussée qui a pratiquement la même valeur, tandis que, selon ce qui a été dit plus haut, la force de Lucas apparaît uniquement sur celui des deux flotteurs dont l'épaisseur est mince, cette force étant seule responsable du déséquilibre qui s'ensuit et pouvant être mesurée. Les mesures ont été effectuées à l'aide d'une balance très sensible, ayant une période d'oscillations d'environ 19 s. L'axe de rotation portait un petit miroir et sur un tambour on pouvait obtenir une trace qui donnait la mesure de la rotation.

La force qui agit sur le fond du flotteur est donnée par la relation (3). C'est une fonction caractéristique du temps. L'équation du mouvement de la balance est donc la suivante :

$$I \frac{d^2 \alpha}{dt^2} + r \frac{d\alpha}{dt} + \omega^2 \alpha = F_L(t). \quad (4)$$

L'intégrale de (4), compte tenu de l'expression théorique de $F_L(t)$ a été calculée numériquement et l'on a ainsi, dans le cas de l'eau, la courbe théo-

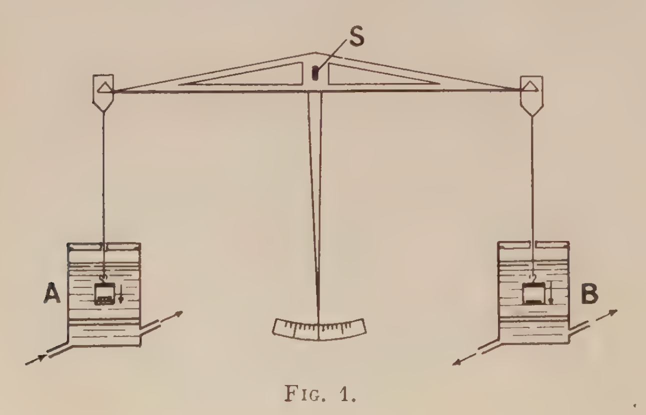


Fig. 1.

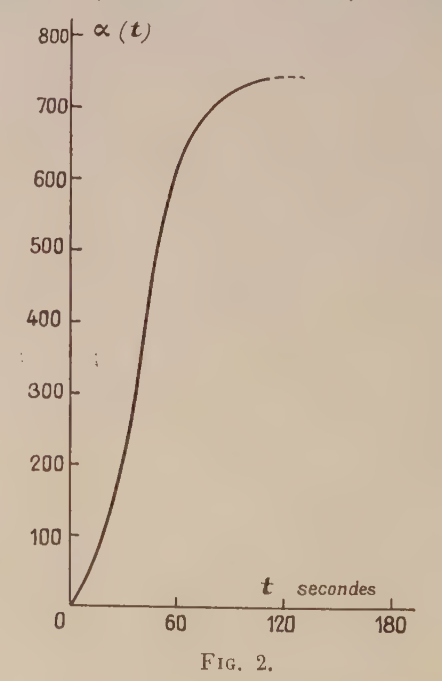


Fig. 2.

rique représentée sur la figure 2. Il faut noter que la variation de α en fonction de t, obtenue par l'intégration de (4), c'est-à-dire en tenant compte de la période $T = 19$ s, et de l'amortissement de la balance utilisée, correspond pour des valeurs élevées de t à la variation de la fonction :

$$f(t) = \sqrt{\rho c/k}\,\frac{1}{\sqrt{t}}\,e^{-x^2\rho c/4kt}$$

(voir *fig.* 2). Les enregistrements expérimentaux qui donnent la valeur de α en fonction du temps peuvent être comparés avec $f(t)$ plutôt qu'avec l'intégrale de l'équation (3) pour des valeurs élevées du temps (pratiquement pour $t = 100$ dans notre cas). Ceci revient à négliger, pour $t > 100$, l'influence du mouvement oscillatoire de la balance, en supposant que le déplacement du bras est directement proportionnel à la force appliquée, c'est-à-dire, indiquant, a étant une constante de proportionalité entre force appliquée F_L et déviation :

$$\alpha = aF_L = a\,\frac{S}{\Phi}\,\frac{\Delta T}{\sqrt{\pi}}\,\sqrt{\rho c/k}\,\frac{1}{\sqrt{t}}\,e^{-x^2\rho c/4kt}.$$

En utilisant divers liquides et enregistrant les déviations α en fonction de t on a trouvé des variations d'un liquide à un autre outre la variation due à la diversité de k, e, c pour les divers liquides ; et ceci démontre encore que cette vitesse Φ existe effectivement.

Les enregistrements expérimentaux pour deux liquides sont reportés sur la figure 3*a* et *b* en les comparant avec les graphiques de $f(t)$ (sur la figure 4) on obtient la valeur de Φ. Le tableau donne les résultats obtenus :

Liquides	$\Phi \frac{\text{cm}}{\text{sec}}$	$\frac{4}{3} V \frac{\text{cm}}{\text{sec}}$
—	—	—
Alcool méthylique	$2{,}8.10^5$	$1{,}49.10^5$
Alcool amylique	$1{,}88.10^5$	$1{,}72.10^5$
Eau	$21{,}0.10^5$	$2{,}0\ .10^5$

Comme on peut voir, conformément à ce qui a été obtenu précédemment, les valeurs de Φ peuvent être considérées comme distinctes de celles de $4/3\ V$. Des recherches faites avec cette méthode et avec des installations instrumentales plus précises pourront confirmer d'autant mieux cette différence entre Φ et V.

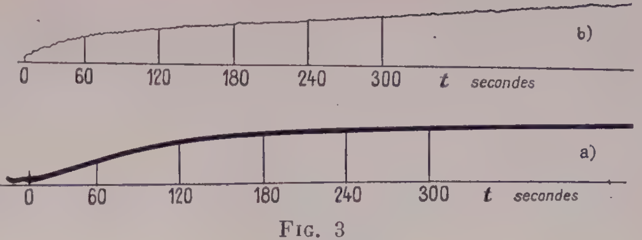


Fig. 3
a) Alcool amylique
b) Alcool méthylique.

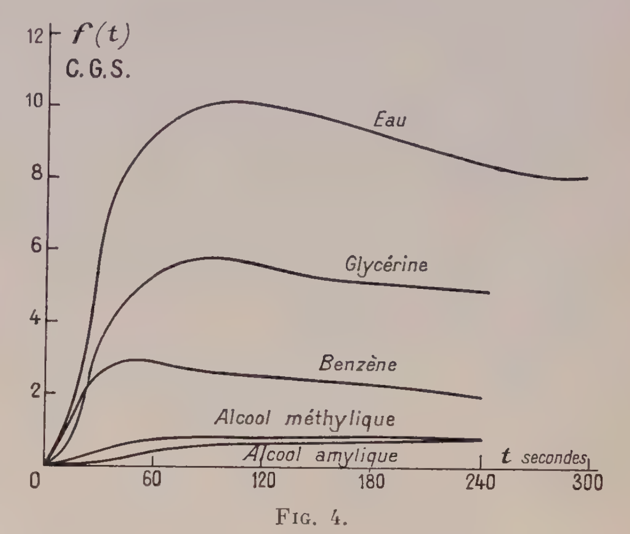


Fig. 4.

La propagation dans un liquide d'un flux de chaleur, est une propagation d'énergie et de quantité de mouvement ; la vitesse avec laquelle la quantité de mouvement se propage peut évidemment se comparer à la vitesse des ondes longitudinales ayant une longueur d'onde très petite.

Les valeurs de cette vitesse sont connues pour des longueurs très grandes en comparaison avec celles des groupes moléculaires, et dans cette zone, V est indépendante de λ, c'est-à-dire on n'y rencontre pas dispersion. Les valeurs de Φ obtenues avec cette méthode pour certains liquides, différentes des valeurs de V, feraient donc penser à une dispersion quand, comme on a dit, on utilise des ondes de λ très petites.

Manuscrit reçu le 10 janvier 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Lucas (R.), *C. R. Acad. Sc.*, 1937, **204**, 418, 731, 960. *J. Physique Rad.*, 1937, **8**, 1044.

[2] Carrelli (A.) et Grossetti (E.), *Nuovo Cimento*, 1956, **3**, 1254 à 1261.

LETTRES A LA RÉDACTION

ÉTUDE CINÉMATIQUE DE L'ÉLECTRO-PRODUCTION DE MÉSONS π

Par M. Paul Kessler,
Laboratoire de Physique Atomique du Collège de France.

L'étude qui suit s'applique en fait non seulement à la production de mésons π par les électrons de haute énergie, mais également et de manière identique à leur production par d'autres particules, pourvu que celles-ci soient suffisamment relativistes, c'est-à-dire telles que leurs énergies et impulsions puissent être confondues (en prenant $c = 1$). Notamment, elle concerne les expériences actuellement en préparation sur la diffusion élastique et inélastique de mésons μ à très haute énergie (de l'ordre du GeV au moins).

1. **Rappel des données cinématiques de la diffusion élastique** (*fig.* 1). — Soit $\boldsymbol{E}$ et $\boldsymbol{E}'$ respectivement l'impulsion (confondue en valeur absolue avec l'énergie)

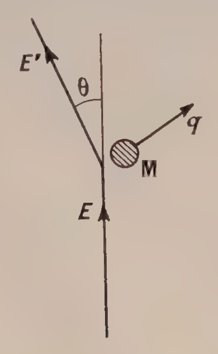


Fig. 1.

initiale et finale de la particule, θ l'angle de diffusion, M la masse du noyau-cible, $\boldsymbol{q}$ l'impulsion transférée au noyau. E, M et θ sont donnés.

Les équations de conservation sont :

$$\boldsymbol{E} - \boldsymbol{E}' = \boldsymbol{q} \quad \text{(a)}$$

$$E - E' + M = \sqrt{q^2 + M^2}, \quad \text{(b)}$$

soit encore, en élevant chaque membre des deux équations au carré :

$$(E - E')^2 + 4EE' \sin^2 \theta/2 = q^2 \quad \text{(a')}$$

$$(E - E')^2 + 2M(E - E') + M^2 = q^2 + M^2. \quad \text{(b')}$$

En soustrayant membre à membre ces deux équations, on obtient :

$$4EE' \sin^2 \theta/2 - 2M(E - E') = 0,$$

et en posant :

$$\gamma = [1 + 2(E/M) \sin^2 \theta/2]^{-1},$$

on a :

$$E' = \gamma E$$

et :

$$q^2 = 2ME(1 - \gamma) + E^2(1 - \gamma)^2.$$

2. **Détermination du seuil de production** — Soit μ la masse du méson π. Les équations de conservation au seuil de production sont :

$$\boldsymbol{E} - \boldsymbol{E}' = \boldsymbol{q} \quad \text{(a)}$$

$$E - E' + M = \sqrt{q^2 + M^2} + \mu, \quad \text{(b)}$$

soit encore :

$$(E - E')^2 + 2\frac{1 - \gamma}{\gamma} ME' = q^2 \quad \text{(a')}$$

$$(E - E')^2 + 2M(E - E') = q^2 + 2\mu\sqrt{q^2 + M^2} + \mu^2. \quad \text{(b')}$$

En soustrayant ces deux équations membre à membre, on obtient :

$$(2/\gamma)\, ME' - 2ME = -2\mu\sqrt{q^2 + M^2} - \mu^2. \quad \text{(c)}$$

Posons $\varepsilon = (\mu/M)$ et notons que $\varepsilon \ll 1$. L'équation ci-dessus peut s'écrire :

$$E' - \gamma E = -\gamma\varepsilon\sqrt{q^2 + M^2} - (\gamma/2)\, \varepsilon^2 M. \quad \text{(c')}$$

Le second membre de cette équation donne la distance entre le seuil de production et le pic élastique. Si l'on se borne à l'approximation d'ordre un en ε, on vérifie facilement qu'il suffit de négliger le second terme du second membre, et de remplacer dans le premier terme q^2 par $q^2_{\text{él}}$ (la valeur de q^2 dans la diffusion élastique). On a ainsi pour le seuil de production :

$$E' \simeq \gamma E - \gamma\varepsilon\sqrt{q^2_{\text{él}} + M^2}.$$

Si l'on veut pousser l'approximation jusqu'au second ordre, il faut se servir du système d'équations formé par (a') et (c'), de la manière suivante : Dans (c'), on transfère au premier membre le terme en ε^2, et on élève ensuite les deux membres au carré. On obtient ainsi (en négligeant un terme en ε^4) :

$$(E' - \gamma E)^2 + \gamma\varepsilon^2 M(E' - \gamma E) = \gamma^2 \varepsilon^2(q^2 + M^2).$$

On remplace ensuite q^2 par son expression en fonction de E' donnée par (a'). On obtient ainsi une équation du second degré en E', dont la solution est (en négligeant les termes à partir de ε^3) :

$$E' = \gamma E - \gamma\varepsilon\sqrt{q^2_{\text{él}} + M^2} - \frac{\gamma\varepsilon^2}{2}\,[M + 2(1 - \gamma)(\gamma E - M)].$$

3. **Corrélation entre le recul du noyau et l'impulsion du méson π créé** (*fig.* 2). — Ici, nous supposons donnés,

en plus de E, M et θ, l'énergie finale E' de la particule diffusée (E' inférieur au seuil de production). Dans ces conditions, on peut poser :

$$|\boldsymbol{E} - \boldsymbol{E}'| = a \; ; \quad E - E' + M = b.$$

Fig. 2.

Soit $\boldsymbol{k}$ l'impulsion du méson π créé, et φ l'angle de $\boldsymbol{k}$ avec $\boldsymbol{q}$. Notons que l'ensemble du processus (création du méson et recul du noyau) présente une symétrie cylindrique autour de l'axe portant le vecteur $\boldsymbol{E} - \boldsymbol{E}'$. Les équations de conservation sont :

$$a^2 = q^2 + 2kq \cos \varphi + k^2 \qquad \text{(a)}$$

$$b = \sqrt{q^2 + M^2} + \sqrt{k^2 + \mu^2}. \qquad \text{(b)}$$

L'équation (b) permet de déterminer k pour toute valeur de q, l'équation (a) détermine ensuite φ. La courbe $k(q)$ est limitée du fait des inégalités :

$$q + k \geqslant a \; ; \; |q - k| \leqslant a \; ; \; q \leqslant q_{\max} \; ; \; k \leqslant k_{\max},$$

où

$$q_{\max} = \sqrt{(b - \mu)^2 - M^2} \; ; \quad k_{\max} = \sqrt{(b - M)^2 - \mu^2}.$$

4. **Application numérique.** — Nous considérons des électrons ou des mésons μ d'une impulsion de 2 GeV/c, diffusés sous un angle de 30° sur des protons. Les données initiales sont donc les suivantes (toutes les énergies étant exprimées en GeV) :

$$E = 2 \; ; \quad M = 0{,}94 \; ; \quad \theta = 30°.$$

1) Diffusion élastique. On trouve :

$$E' = 1{,}55 \; ; \qquad q = 1{,}02.$$

Fig. 3.

2) Seuil de production. Avec $\mu = 0{,}14$, on trouve :

$$E' = 1{,}38.$$

3) Corrélation entre q et k. Nous nous plaçons par exemple à une énergie finale $E' = 1$. On trouve pour les différentes constantes :

$$a = 1{,}24 \; ; \quad b = 1{,}94 \; ; \quad q_{\max} = 1{,}54 \; ; \quad k_{\max} = 0{,}99.$$

La courbe $k(q)$ a l'allure indiquée sur la figure 3, où les droites correspondant aux différentes limites sont indiquées en pointillé.

Le présent travail a été réalisé sous les auspices du Centre National de la Recherche Scientifique, et a bénéficié également de l'aide du Commissariat à l'Énergie Atomique.

Lettre reçue le 2 mars 1961.

ÉMISSION AU COURS DU TEMPS DE QUELQUES RAIES D'IONS PRODUITS PAR UNE ÉTINCELLE CONDENSÉE SOUS VIDE

par M. Jean-Louis Schwob
et Mlle Germaine Balloffet,
Laboratoire des Hautes Pressions (Bellevue)

L'étude des variations en fonction du temps de l'intensité des raies émises par des étincelles est généralement limitée aux raies d'atomes neutre [1] ou d'ions de degré d'ionisation 1 ou 2 [2] [3] produites par des étincelles ordinaires ; on observe, dans l'ensemble, que le maximum d'émission d'une raie donnée se produit d'autant plus tard que l'énergie requise pour l'obtention de cette raie est plus faible [2] [3]. Il nous a semblé intéressant de compléter les données existantes en étendant ces mesures au spectre des étincelles sous vide, dont on sait [4] qu'il est émis par des ions de degrés d'ionisation divers couvrant un domaine d'énergie compris entre 20 et 300 eV avec les puissances que nous utilisons normalement (conditions maxima : 8μF-25 kV). Rappelons ici que l'on calcule l'énergie nécessaire à l'obtention d'une raie en ajoutant les énergies d'ionisation intervenant jusqu'au degré observé et l'énergie d'excitation du niveau considéré.

Les mesures (*) ont été faites à l'aide d'un spectrographe à vide pour l'ultraviolet lointain [5], équipé d'un dispositif de réception photoélectrique comportant une série de fentes de sortie montées sur une platine matérialisant le cercle de Rowland, et préalablement ajustées sur les raies étudiées. Une commande extérieure de déplacement permet de régler en cours de mesure la position des fentes à mieux que 1/20 mm. Les faisceaux lumineux sélectionnés par ces fentes sont réfléchis par des miroirs et dirigés sur des récepteurs photoélectriques commerciaux associés à des couches

(*) Ce travail a été effectué en liaison avec le Service de Fusion Contrôlée du C. E. N. de Fontenay, auquel nous sommes redevables, en particulier, de la réalisation de l'appareillage électronique et haute tension ; nous sommes heureux de remercier M. Hubert de l'assistance dont nous avons bénéficié.

fluorescentes (salicylate de Na). Chaque photomultiplicateur est relié à un oscillographe ; la charge dans le collecteur est réduite à 1 kΩ ou 2 kΩ afin de pas déformer le signal.

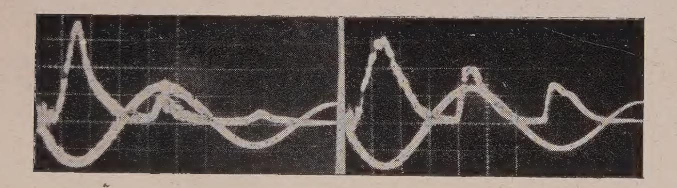
Les étincelles étaient produites en utilisant le dispositif comportant une électrode d'amorçage [6], l'électrode émettrice (anode) étant en aluminium et contenant, le cas échéant une poudre de chlorure d'ammonium (Cl, N, H), ou un nitrate (N et O), ou de l'alumine (O seul). La capacité du circuit de décharge pouvait prendre les valeurs 2-4-6-8 μF correspondant respectivement à des décharges de période : 10,5-12,5-14 et 15 μs, c'est-à-dire des selfs résiduelles de 1,4-0,8 et 0,7 μH.

Enfin l'oscillogramme du courant dans la décharge est obtenu en utilisant comme signal la tension produite aux bornes d'un shunt convenable par le courant induit dans une ceinture de Rogowski.

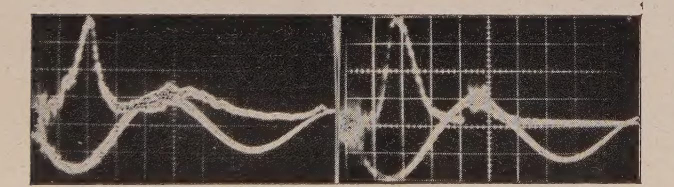
TABLEAU I

Élément	λ		Transition	Énergie
Hydrogène	1 215,67	($L\alpha$)	$1s\ ^2S_{1/2} — 2p\ ^2P$	10,15
Al_{III}	1 862,782		$3s\ ^2S_{1/2} — 3p\ ^2P_{1/2}$	31,34
N_V	1 238,800		$2s\ ^2S_{1/2} — 2p\ ^2P_{3/2}$	178,28
O_{VI}	1 031,912		$2s\ ^2S_{1/2} — 2p\ ^2P_{3/2}$	305,69
O_V	1 371,287		$2s2p\ ^1P^o_1 — 2p^2\ ^1D_2$	208,96
Cl_{VII}	813,002		$3s\ ^2S_{1/2} — 3p\ ^2P_{1/2}$	327

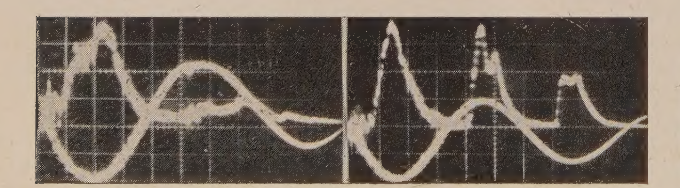
Le tableau I donne les différentes raies ayant fait l'objet de cette étude, avec leur longueur d'onde, la transition électronique et l'énergie correspondante. On a représenté (*fig.* 1) quelques oscillogrammes caractéristiques de ces raies en indiquant la valeur de la capacité utilisée, le balayage est toujours le même : 2 μs par division. La courbe inférieure représente l'évolution du courant au cours de la décharge, la courbe supérieure l'émission de la raie indiquée. Le phénomène le plus marquant et le plus général pour les raies étudiées qui sont des raies de résonance d'ions alcalinoïdes [7] correspondant à des énergies extrêmement différentes (tableau I) est l'existence d'un maximum d'émission au même instant, soit 3 ou 4 μs après le début de la décharge. La reproductibilité de ce maximum en position dans le temps est de l'ordre de 1 μs. Comme le premier maximum du courant ne se déplace que de 2,6 à 3,75 μs environ pour les valeurs extrêmes de capacité que nous avons utilisées, il est difficile de préciser si le maximum d'émission a lieu exactement en même temps que le maximum du courant. Il semble cependant que le premier se déplace très peu dans le temps, lorsqu'on augmente la capacité. Par ailleurs, la durée de ce premier pic d'émission est d'autant plus longue que la capacité est plus grande.



Hydrogène. Lα 1 215 Å avec 4μF N_V. 1 238 Å avec 4μF



Al_{III}. 1 862 Å avec 4μF O_{VI}. 1 031 Å avec 4μF



Al_{III}. 1 862 Å avec 8 μF Cl_{VII}. 813 Å avec 4μF

Fig. 1.

D'autre part, on peut noter l'existence d'un ou deux maxima secondaires souvent très importants, mais peu reproductibles en intensité ; cependant pour toutes les raies étudiées ces maxima se produisent toujours aux mêmes instants, soit : un peu après les second et troisième maxima du courant respectivement. Ces maxima sont très nets dans le cas de l'émission par des poudres (raies de N_V, Cl_{VII}, O_{VI} et Lyman α de l'hydro-

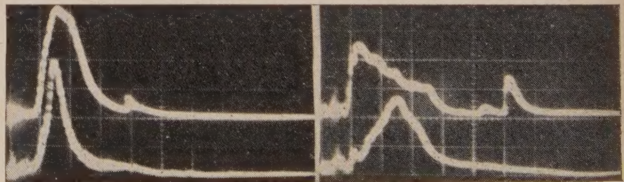


Fig. 2.

O_{VI}. 1 031 Å (courbes du haut)
O_V. 1 371 Å (courbes du bas)
A gauche, avec 2μF ; à droite, avec 8μF.

gène). Lorsquon augmente la capacité de la décharge (à partir de 4 μF). A l'inverse de ce qu'on observe dans le cas du premier maximum d'émission, les maxima suivants correspondent à des instants qui dépendent de la période du courant.

L'étude comparative d'une raie d'un ion non alcalinoïde (de degré d'ionisation plus faible d'une unité) a été faite avec la raie de O_V à 1 371 Å en observant simultanément les oscillogrammes donnés par O_V et O_{VI} (*fig.* 2). Le maximum d'émission de O_V se produit de plus en plus tard lorsqu'on augmente la capacité ; au bout de trois microsecondes avec 2μF et au bout de 5μs avec 8 μF, c'est-à-dire toujours un peu après l'instant correspondant au premier maximum du courant. Remarquons que, le maximum de O_{VI} ayant lieu toujours au bout de 3 ou 4 μs quelque soit la capacité utilisée, le maximum d'émission de O_V se produit soit avant, soit après celui de O_{VI} selon la valeur de la capacité.

On peut penser que, à partir du moment où l'on dispose, au cours de la montée de courant de décharge, d'une énergie instantanée suffisante, soit E_c, pour ioniser les atomes évaporés de l'anode jusqu'au dernier électron périphérique inclus, l'émission des raies de résonance des ions alcalinoïdes se produira par recombinaison radiative des électrons avec les ions formés, cette émission ayant lieu au bout d'un temps qui ne dépend pratiquement pas de l'énergie de la décharge. L'autre processus d'émission, habituel, dans les décharges de type courant consiste en ionisations successives puis excitation du niveau intéressé (sans dépasser ce niveau). Ici les deux processus vont probablement contribuer à l'émission, le premier prédominant peu à peu lorsqu'on augmente l'énergie électrique instantanée. Lorsque cette énergie devient suffisamment supérieure à E_c pour permettre l'excitation des raies de l'ion de degré $i + 1$ ayant perdu ses électrons périphériques, voire pour ioniser une fois de plus cet ion, l'émission de l'ion alcalinoïde (de degré i) se produira essentiellement par recombinaison radiative, d'où un maximum d'émission décalé vers les temps plus longs par rapport au cas d'une excitation directe par impacts successifs. Ceci semble se produire avec l'aluminium qui émet assez facilement les raies de l'ion Al_{IV} et même Al_V ; effectivement l'apparition du maximum d'émission des raies de Al_{III} se produit un peu plus tard (à 5 μs du début de la décharge, donc après le maximum de courant) lorsqu'on augmente la capacité (à 8 μF). De même pour une valeur élevée de l'énergie instantanée, l'émission des ions de degré $i - 1$ (O_V) sera retardée par rapport à celle des ions alcalinoïdes (O_{VI}), étant donné le plus grand nombre de recombinaisons nécessaires avant d'atteindre le niveau de base de cet ion (*fig.* 2).

A partie d'une valeur de la capacité de 4 μF, l'énergie de la seconde demi-oscillation de courant et généralement de la troisième est encore suffisante pour renouveler le processus de ionisation jusqu'au dernier électron périphérique, mais il faut maintenant l'intensité maximum du courant pour le produire, et par suite le pic d'émission a toujours lieu un peu après le maximum de courant.

En résumé, selon la valeur de l'énergie instantanée on aura donc soit une émission des ions de degré $i - 1$ précédant celle des ions de degré i, soit l'inverse, et dans ce cas l'émission des ions de degré $i - 1$ se produit lors du refroidissement du plasma.

Lettre reçue le 3 mai 1961.

BIBLIOGRAPHIE

[1] CUNDALL (C. M.) et CRAGGS (J. D.), *Spectrochim. Acta*, 1957, 968.
[2] MANDELSTAM (S.), *Spectrochim. Acta*, 1959, 255.
[3] VANIUKOV (M. P.), MAK (A. A.), MURATOV (V. R.), *Opt. i. Spektrosk.*, 1959, **6**, 17.
[4] BALLOFFET (G.), *Ann. Physique*, 1960, 1243.
[5] ROMAND (J.) et VODAR (B.), *Rev. d'Optique*, 1958, **37**, 329.
[6] ROMAND (J.), BALLOFFET (G.), VODAR (B.), *Spectrochim. Acta*, 1959, 454.
[7] BALLOFFET (G.) et ROMAND (J.), *C. R. Acad. Sci.*, 1956, **242**, 1964.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM TOME 22, JUIN 1961, PAGE 391.

COMMUNICATION A LA SOCIÉTÉ DE PHYSIQUE

MESURE BALISTIQUE DES PETITS FLUX D'INDUCTION. DISPOSITIF MULTIPLICATEUR DE LA SENSIBILITÉ

Par J. CAYREL,

Laboratoire de Physique Générale
de la Faculté des Sciences de Bordeaux,

Considérons un galvanomètre balistique ayant une résistance propre $g = 340\ \Omega$ et une résistance critique $R_c = 81\ 340\ \Omega$. Comparons les sensibilités au flux de ce balistique, quand il fonctionne au régime critique : $R = g + r_{ex} = R_c$, et quand il fonctionne en fluxmètre : $R = g$, en supposant négligeable devant g la résistance de la bobine connectée au galvanomètre, dans laquelle on produit la variation de flux $\Delta\Phi_{ex}$ à mesurer.

L'équation du mouvement du cadre étant :

$$K\theta'' + \left(F_1 + \frac{\Phi_1^2}{R}\right)\theta' + C\theta = \Phi_1\, i_{ex}.$$

Soient θ_c et θ_f les maxima des déviations angulaires

du cadre pour les deux régimes considérés. La comparaison des sensibilités au flux $S_c = \theta_c / \Delta\Phi_{ex}$ et $S_f = \theta_f / \Delta\Phi_{ex}$ dans les deux cas donne :

$$\frac{S_f}{S_c} = \frac{\theta_f}{\theta_c} = \frac{e}{2} G \quad \text{avec} \quad G = \frac{1}{1 - (F_1 / 2\sqrt{KC})}.$$

Pour le galvanomètre [1] étudié on avait :

$$G = 1{,}35 \quad \text{et} \quad S_f / S_c = 1{,}83.$$

Ainsi quand la résistance du circuit du balistique passe de 81 340 Ω à 340 Ω la sensibilité au flux est *seulement multipliée par le facteur* 1,83, alors que la quantité d'électricité traversant le galvanomètre est *multipliée par* R_c/g, *soit par* 239. La disparité entre l'augmentation de la déviation et celle de la quantité d'électricité s'explique du fait que la division par 240 de la résistance du circuit du galvanomètre multiplie dans les mêmes proportions, et la quantité d'électricité induite génératrice de l'impulsion donnée au cadre, et l'intensité des courants induits par l'aimant du galvanomètre dans son propre cadre au cours de la rotation de ce dernier. Ces courants ont pour effet, conformément à la loi de Lenz, de freiner énergiquement le mouvement du cadre. On se rend compte de l'importance de ce freinage dans le fonctionnement en fluxmètre par la lenteur extrême du retour au zéro du spot qui exige plus d'une demi-heure.

Si la quantité d'électricité induite développée dans le circuit du balistique, quand il fonctionne en fluxmètre ($R = g$), traversait le cadre du même appareil fonctionnant en circuit ouvert, c'est-à-dire affranchi de tout freinage électrique, la déviation θ_c du régime critique serait multipliée par 239 e, soit par 650.

Des considérations qui précèdent, il résulte que si l'on pouvait produire *très rapidement* la quantité d'électricité induite *avant que le cadre du balistique ait bougé* dans un circuit induit, dont la résistance se réduirait à la résistance g du galvanomètre, et *immédiatement après*, couper le circuit du galvanomètre ($R = \infty$), la déviation du balistique pour une même variation de flux extérieur $\Delta\Phi_{ex}$ deviendrait 650 fois plus grande, et non plus 1,83 fois plus grande, qu'au régime critique ($R = R_c$).

Tel est le principe de l'appareil que nous avons imaginé.

Il se compose de deux rupteurs K_1, K_2 actionnés par deux roues à cames en Lucoflex montées sur le même axe et dont la rotation est obtenue par la tension d'un ressort agissant sur une manivelle solidaire de l'axe. Une gâchette déclenche la rotation des roues à cames.

Le premier rupteur K_1 est intercalé dans le circuit inducteur. Lorsqu'il fonctionne à l'époque t_1 le courant inducteur passe de I à 0 dans un temps très court. Le second rupteur K_2 est inséré dans le circuit induit composé de la bobine induite et du galvanomètre. Le rupteur K_2 doit fonctionner *postérieurement* au rupteur K_1 à l'époque $t_1 + \tau$. Le temps τ doit être *assez long* pour que la f. e. m. induite dans le circuit galvanomètre puisse y produire intégralement la quantité d'électricité $\Delta\Phi_{ex}/g$.

Par ailleurs, il doit être *assez court* pour que le cadre du galvanomètre n'ait pratiquement pas bougé avant la rupture du circuit induit, qui libère le cadre du balistique des courants de freinage. Rien ne prouve que les deux conditions sus-énoncées soient pleinement compatibles.

Le réglage de τ s'obtient en décalant plus ou moins la roue à came du rupteur K_2 par rapport à celle du rupteur K_1, et aussi en réglant la tension du ressort qui actionne les roues. La mesure de τ à l'oscilloscope nous a donné un temps de l'ordre de 10^{-3} s.

La valeur expérimentale du facteur F_c de multiplication de la sensibilité par rapport à celle du régime critique atteint 382, soit 59 % de la valeur théorique : $R_c e/g = 650$.

Autrement dit, l'élongation maxima du spot, que nous obtenons avec notre dispositif, pour un courant inducteur de 2 mA, est de 130 mm sur une échelle de lecture placée à 1 mètre, alors que, sans le dispositif, on obtient une élongation maxima de 0,34 mm. Bien entendu, cette dernière valeur est déduite d'une mesure avec courant inducteur de 100 mA qui donne une élongation de 17 mm, d'où avec 2 mA au lieu de 100 mA la déviation 0,34 mm.

Le problème qui nous reste à résoudre est de savoir si le facteur de multiplication de 380 peut être rapproché de la valeur théorique 650 par une réduction de l'intervalle de temps τ séparant le fonctionnement des deux rupteurs. Ou si, au contraire, la différence entre les valeurs théorique et expérimentale de F tient à une incompatibilité entre les conditions théoriques fixant pour le galvanomètre considéré, les valeurs minimum et maximum de τ. Même dans cette dernière hypothèse une multiplication par 380 de la sensibilité au flux est assez grande pour être susceptible d'applications.

Section du Sud-Ouest, Séance du 2 juin 1961.

[1] Pour beaucoup de galvanomètres on a sensiblement $G = 1$, d'où $S_f/S_c = e/2 \simeq 1{,}36$.

Le Gérant : MAURICE BLONDIN. — Dépôt légal : 2e trim. 1961. — Imp. TAFFIN-LEFORT, à Lille (France).